



**SKRIPSI**

**PENGARUH PENAMBAHAN ADITIF PEG TERHADAP  
MORFOLOGI DAN KEKUATAN MEKANIK MEMBRAN  
ASIMETRIS PEROVSKIT  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$**

**MOHAMMAD HASNAN HABIB  
NRP. 1413100081**

**Pembimbing I  
Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D**

**Pembimbing II  
Ir. Endang Purwanti S., M.T**

**DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2017**



## SCRIPT

### EFFECT OF PEG ADDITIVE ON MORPHOLOGY AND MECHANICAL STRENGTH OF $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ PEROVSKITE ASYMMETRIC MEMBRANE

MOHAMMAD HASNAN HABIB  
NRP. 1413100081

Supervisor  
Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D

Co-Supervisor  
Ir. Endang Purwanti S., M.T

DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
FACULTY OF MATHEMATICS AND NATURAL SCIENCES  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2017

**PENGARUH PENAMBAHAN ADITIF PEG TERHADAP  
MORFOLOGI DAN KEKUATAN MEKANIK MEMBRAN  
ASIMETRIS PEROVSKIT  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$**

**SKRIPSI**

Disusun sebagai Syarat untuk Memperoleh Gelar Sarjana Sains  
pada Departemen Kimia  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya

Oleh:

**MOHAMMAD HASNAN HABIB**  
NRP. 1413100081

DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUANALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2017

## LEMBAR PENGESAHAN

PENGARUH PENAMBAHAN ADITIF PEG TERHADAP  
MORFOLOGI DAN KEKUATAN MEKANIK MEMBRAN  
ASIMETRIS PEROVSKIT  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$

SKRIPSI

Disusun Oleh

MOHAMMAD HASNAN HABIB  
NRP. 1413100081

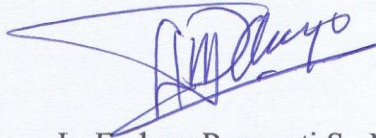
Surabaya, 20 Juli 2017  
Menyetujui,

Pembimbing I,



Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D.  
NIP. 19691017 199412 1 001

Pembimbing II,



Ir. Endang Purwanti S., M.T  
NIP. 19560110 198503 2 001



Mengetahui,  
Kepala Departemen Kimia,



Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc  
NIP. 195710616 199703 1 002

## KATA PENGANTAR

Alhamdulillah, puji syukur saya panjatkan kehadiran Allah SWT yang telah memberikah rahmat-NYA kepada saya, sehingga Skripsi saya yang berjudul “Pengaruh Penambahan Aditif PEG terhadap Morfologi dan Kekuatan Mekanik Membran Asimetris Perovskit  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ ” dapat saya selesaikan. Tulisan ini tidak akan terwujud dengan baik tanpa bantuan, dukungan dan dorongan dari semua pihak, untuk itu penulis menyampaikan terima kasih kepada:

1. Hamzah Fansuri, M.Si, Ph.D. dan Ir.Endang Purwanti S., M.T selaku dosen pembimbing yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama proses persiapan, pengerjaan dan penyelesaian tugas akhir ini.
2. Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M. Sc., selaku Kepala Departemen Kimia, FMIPA-ITS atas fasilitas yang telah diberikan hingga naskah tugas akhir ini dapat terselesaikan.
3. Dr. Djoko Hartanto, M.Si. selaku kepala Laboratorium Kimia Material dan Energi atas izin pemakaian fasilitas labortorium dan masukan yang diberikan selama pengerjaan penelitian ini.
4. Muhammad Nadjib, M.S. selaku dosen wali yang selalu memberi pengarahan dan motivasi selama masa perkuliahan saya.
5. Abah, ibu, kakak dan adik saya yang selalu memberikan kasih sayang, perhatian dan motivasi.
6. Luhur K.A., Annisa T.A., Astried W.W., Luthfi K.N yang selalu memberikan semangat serta partner penelitian terbaik saya, Rifka Etriana, yang selalu membantu, memberi saran, memberi semangat serta menghibur saya selama pengerjaan penelitian ini.
7. Teman teman ANORTHITE (Kimia 2013) dan seluruh fungsionaris “GAMMA” HIMKA-ITS 2015-2016 yang selalu memberikan semangat.

8. Teman-teman kelompok penelitian *Material for Energy and Environment* yang selalu memberikan masukan, saran dan motivasi.

Penulis menyadari bahwa dalam penyusunan naskah ini masih terdapat kekurangan. Penulis mengharapkan saran yang bersifat membangun terhadap tulisan ini. Semoga naskah ini memberikan manfaat dan inspirasi terutama bagi pihak-pihak yang menekuni bidang terkait dengan yang penulis kerjakan.

Surabaya, 20 Juli 2017

Penulis

PENGARUH PENAMBAHAN ADITIF PEG TERHADAP  
MORFOLOGI DAN KEKUATAN MEKANIK MEMBRAN  
ASIMETRIS PEROVSKIT  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$

Nama : Mohammad Hasnan Habib  
NRP : 1413100081  
Departemen : Kimia  
Pembimbing I : Hamzah Fansuri, Ph.D  
Pembimbing II : Ir. Endang Purwanti S., M.T

**Abstrak**

Telah dilakukan pembuatan membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428 dengan metode inversi fasa rendam-endap dan sintering. Oksida perovskit LSCF 6428 yang digunakan disintesis dengan metode *solid state*. Pada penelitian ini digunakan poli eter sulfon (PESf) sebagai polimer perekat, dimetil sulfoksida (DMSO) sebagai pelarut dan aqua DM sebagai non-pelarut koagulan. Dilakukan variasi penambahan aditif PEG 6000 dan 8000 dengan masing-masing konsentrasi 0; 0,23%; 0,39% dan 0,55 %. Membran mentah yang dihasilkan diamati morfologinya menggunakan SEM. Membran dengan penambahan aditif PEG 6000 memiliki morfologi yang paling teratur. Semakin besar konsentrasi PEG yang ditambahkan membentuk lapisan rapat yang semakin tipis dan diameter pori berbentuk *fingerlike* semakin kecil. Selanjutnya dilakukan dekomposisi polimer dan sintering membran mentah pada suhu 1250 °C selama 4 jam. Hasil pengamatan morfologi membran setelah sintering menunjukkan membran menjadi lebih rapat dan ukuran pori mengecil, namun tidak terjadi perubahan yang berarti pada struktur membran asimetris LSCF 6428. Uji kekerasan membran menunjukkan bahwa membran dengan penambahan aditif 8000 memiliki nilai kekerasan lebih besar dibandingkan membran dengan penambahan aditif 6000.

Kata Kunci : Membran asimetris, LSCF 6428, inversi fasa, aditif PEG

EFFECT OF PEG ADDITIVE ON MORPHOLOGY AND  
MECHANICAL STRENGTH OF  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$   
PEROVSKITE ASYMMETRIC MEMBRANE

Name : Mohammad Hasnan Habib  
NRP : 1413100081  
Department : Chemistry  
Supervisor : Hamzah Fansuri, Ph.D  
Co-Supervisor : Ir. Endang Purwanti S.,M.T

**Abstract**

LSCF 6428 perovskite asymmetric membranes were prepared by phase inversion and sintering method. LSCF 6428 perovskite which used was synthesized by solid state method. This study used poly ether sulphone (PESf) as binder polymer, dimethyl sulfoxide (DMSO) as solvent and aqua DM as non-solvent or coagulant. Poly Ethylen Glycol (PEG) 6000 and 8000 as additives was added with each concentration of 0; 0,23%; 0,39% dan 0,55 %. The obtained green bodies morphology were observed by SEM. The green bodies with PEG 6000 additive have better uniform morphology than others. Increase PEG concentration reduce dense layer and pore size. Next, the green bodies were sintered at 1250 °C with dwell time of 4 hours. The observation of the sintered membranes morphology showed that the membrane becoming denser and the pore size becoming smaller, but no significant change in the structure of LSCF 6428 asymmetric membrane. LSCF 6428 perovskite asymmetric membranes which added PEG 8000 is harder than PEG 6000 added membranes.

**Key Words** : Asymmetric membrane, LSCF 6428, phase inversion, PEG



## DAFTAR ISI

SKRIPSI.....	i
LEMBAR PENGESAHAN.....	<b>Error! Bookmark not defined.</b>
KATA PENGANTAR.....	iv
Abstrak .....	vii
Abstract .....	viii
DAFTAR ISI .....	ix
DAFTAR GAMBAR .....	xii
DAFTAR TABEL .....	xiv
DAFTAR LAMPIRAN .....	xv
BAB I PENDAHULUAN .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Permasalahan .....	5
1.3 Batasan Masalah .....	5
1.4 Tujuan Penelitian .....	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA .....	7
2.1 Oksida Perovskit .....	7
2.2 Oksida Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ .....	9
2.3 Membran .....	11
2.4 Membran Asimetris .....	14
2.5 Inversi Fasa Rendam endap-Sintering .....	15
2.6 Difraksi Sinar-X .....	21
2.7 Thermo Gravimetric Analysis-Differential Scanning Calorimetry (TGA-DSC) .....	23

2.8	Scanning Electron Microscope (SEM) .....	26
2.9	Uji Kekuatan Mekanik (Kekerasan) Membran .....	27
2.10	Termo Mechanical Analysis (TMA).....	29
BAB III METODOLOGI PENELITIAN .....		31
3.1	Alat dan Bahan.....	31
3.1.1	Alat.....	31
3.1.2	Bahan .....	31
3.2	Prosedur Penelitian .....	32
3.2.1	Sintesis Oksida Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF 6428) .....	32
3.2.2	Preparasi Membran Datar Asimetris.....	32
3.2.3	Karakterisasi dengan <i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM).....	33
3.2.4	Analisis Thermal Gravimetri Analisis-Differential Scanning Calorimetri (TGA-DSC) .....	33
3.2.5	Analisis Thermo Mechanical Analysis (TMA).....	33
3.2.6	Uji Kekuatan Mekanik (kekeraan) Membran Asimteris Perovskit LSCF 6428.....	34
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....		35
4.1	Sintesis Oksida Perovskit LSCF 6428 .....	35
4.2	Preparasi Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428 ..	38
4.3	Morfologi Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428 Pra-Sintering .....	43
4.4	Morfologi Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428 (Pasca-Sintering).....	46
4.5	Uji Kekerasan Membran .....	50

4.6	Koefisien Ekspansi Termal Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428.....	52
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN .....		57
5.1	Kesimpulan .....	57
5.2	Saran .....	57
DAFTAR PUSTAKA.....		59
LAMPIRAN .....		66
BIODATA PENULIS.....		84

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Struktur Oksida Perovskit (Feng dkk., 2008).....	7
Gambar 2.2	Skema pemisahan dua fasa dengan membran (Mulder, 1996) .....	12
Gambar 2.3	Foto SEM (a) membran simetris, (b) membran asimetris (Ulbricht dkk., 2004) .....	15
Gambar 2.4	Tahapan proses pencetakan membran dengan teknik inversi fasa rendam endap (Hubadilla, dkk., 2016) .....	16
Gambar 2.5	Proses pertukaran pelarut dan non-pelarut (Lalia dkk., 2013) .....	17
Gambar 2.6	Partikel selama proses sintering (Mulder, 1996).20	
Gambar 2.7	Pengaruh Suhu sintering terhadap kekuatan mekanik membran perovskit (Tan dkk., 2010) ....	20
Gambar 2.8	Contoh difraktogram perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ (Santos dkk., 2011) .....	23
Gambar 2.9	Contoh Kurva TGA $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ (Atkins dkk., 2010) .....	24
Gambar 2.10	Set Prinsip Instrumen TGA (Atkins dkk., 2010)..	25
Gambar 2.11	Foto SEM membran serat berongga perovskit LSCF 6428 (Tan dkk., 2011) .....	27
Gambar 2.12	Indentor (A) tampak dari samping, (B) tampak dari bawah (Callister, 2007) .....	28
Gambar 2.13	Grafik hasil uji kekerasan dengan MicroHardness kepingan oksida perovskit LSCF 6419 (Akbari, dkk., 2016) .....	29
Gambar 2.14	Grafik Ekspansi termal LSCF 4628 (Swierczek, 2008) .....	30
Gambar 4.1	Skema kalsinasi tahap pertama .....	36
Gambar 4.2	(a) Campuran prekursor Perovskit sebelum dikalsinasi dan (b) Campuran prekursor perovskit setelah dikalsinasi.....	37
Gambar 4.3	Difraktogram oksida perovskit LSCF 6428 .....	38
Gambar 4.4	Membran Mentah Oksida Perovskit LSCF 6428.	40

Gambar 4.5	Termogram (a) TGA dan (b) DSC membran mentah oksida perovskit LSCF 6428 .....	42
Gambar 4.6	Foto SEM morfologi membran mentah asimetris LSCF 6428 (kiri : permukaan berpori, tengah : permukaan rapat, kanan : penampang melintang). A-G (PEG 6000 0,23;0,39;0,55 %, PEG 8000 0,23;0,39;0,55 %, tanpa aditif).....	44
Gambar 4.7	Membran setelah sintering .....	46
Gambar 4.8	Foto SEM morfologi membran asimetris LSCF 6428 setelah sintering (kiri : permukaan rapat, tengah : permukaan berpori, kanan : penampang melintang). A-G (PEG 6000 0,23;0,39;0,55 %, PEG 8000 0,23;0,39;0,55 %, tanpa aditif) .....	48
Gambar 4.9	Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 8000.....	54
Gambar 4.10	Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 6000.....	55
Gambar 4.11	Hasil TMA membran tanpa penambahan aditif ...	55

## **DAFTAR TABEL**

Tabel 4.1	Penyusutan ukuran membran setelah sintering .....	47
Tabel 4.2	Pengukuran volume pori membran asimetris .....	49
Tabel 4.3	Nilai Kekerasan Membran.....	51
Tabel 4.4	Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 dengan penambahan aditif PEG 8000 .....	53
Tabel 4.5	Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 dengan penambahan aditif PEG 6000 .....	53
Tabel 4.6	Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 tanpa penambahan aditif .....	54

## DAFTAR LAMPIRAN

LAMPIRAN A SKEMA KERJA .....	66
A.1. Skema Kerja Sintesis $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ .....	66
A.2. Skema Kerja Preparasi Membran Asimetris Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ .....	67
LAMPIRAN B PERHITUNGAN .....	68
B.1. Perhitungan Sintesis LSCF 6428 .....	68
B.2. Perhitungan Komposisi Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428 .....	69
B.3. Perhitungan % Penyusutan Membran .....	70
B.4. Perhitungan Volume pori .....	70
B.5. Perhitungan nilai kekerasan Membran .....	71
B.6. Uji ANOVA Nilai Kekerasan Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428 .....	73
LAMPIRAN C HASIL KARAKTERISASI .....	74
C.1. Hasil Analisa Difraksi Sinar X .....	74
C.2. Hasil TGA-DSC Membran Mentah LSCF 6428 .....	74
C.3. Hasil TMA Membran Asimetris LSCF 6428 .....	77
C.4. Hasil Karakterisasi Micro Vickers Hardness .....	81

# **BAB I**

## **PENDAHULUAN**

### **1.1 Latar Belakang**

Energi menjadi kebutuhan pokok masyarakat dunia dewasa ini. Kebutuhan akan energi bertambah seiring berjalannya waktu. Hal ini membuat konsumsi bahan bakar minyak bumi yang merupakan sumber energi utama juga semakin bertambah. Keadaan tersebut berbanding terbalik dengan cadangan minyak bumi yang semakin hari semakin berkurang. Tentunya, keadaan ini membutuhkan solusi berupa sumber yang dapat menggantikan minyak bumi.

Gas alam merupakan salah satu alternatif bahan bakar pengganti minyak dengan komponen utama berupa gas metana ( $\text{CH}_4$ ) dengan kandungan berkisar 80 sampai 90 %. Dengan jumlahnya yang cukup melimpah, gas alam diprediksi akan menjadi sumber energi pengganti minyak di masa yang akan datang. Hal ini bukanlah tanpa masalah. Permasalahan yang timbul adalah gas alam sering ditemukan di daerah yang terpencil dan membutuhkan biaya transportasi yang mahal untuk memindahkannya, oleh karena itu para peneliti gencar melakukan penelitian untuk memecahkan masalah tersebut. Salah satu solusi yang paling banyak digunakan adalah mengonversikan gas metana menjadi syngas ( $\text{CO} + \text{H}_2$ ) (Jalowiecki dkk., 2008).

Komponen utama gas alam, yaitu gas metana ( $\text{CH}_4$ ) dapat dikonversikan menjadi syngas ( $\text{CO} + \text{H}_2$ ) yang secara langsung dapat digunakan sebagai bahan bakar atau dapat diubah menjadi bahan bakar cair atau bahan kimia yang lain dengan metode sintesis Fischer-Tropsch. Beberapa metode yang dapat digunakan untuk konversi  $\text{CH}_4$  ke syngas antara lain *Steam Reforming Methane* (SRM),  *$\text{CO}_2$  Reforming Reaction* (CRR) dan *Partial oxidation of Methane* (POM). Dari ketiga metode tersebut POM memiliki beberapa keuntungan yakni reaksinya eksotermis dan membutuhkan reaktor yang relatif kecil, mengonsumsi energi



yang kecil serta memiliki efisiensi yang besar (Roseno dkk., 2016).

*Partial Oxidation of Methane* (POM) membutuhkan oksigen dalam jumlah yang terkontrol dalam reaksinya karena jika terdapat oksigen yang berlebihan, maka gas metana ( $\text{CH}_4$ ) akan teroksidasi sempurna menjadi  $\text{CO}_2$  dan  $\text{H}_2\text{O}$ . Oleh karena itu, dibutuhkan cara untuk mengontrol jumlah oksigen dalam reaksi POM. Salah satu caranya adalah dengan menggunakan membran oksida perovskit yang memiliki kemampuan sebagai penghantar ion oksigen. Seperti yang telah dilaporkan Teraoka dkk. (1985), oksida perovskit dapat memberikan oksigen kisinya secara reversibel kepada pereaksi lain sampai batas tertentu tanpa menyebabkan perubahan struktur yang berarti. Kemampuan oksida perovskit inilah yang menyebabkannya banyak dimanfaatkan sebagai membran pemisahan gas dan reaksi POM (Tan dkk., 2010).

Fluks permeasi oksigen dan kekuatan mekanik merupakan dua parameter penting untuk membran oksida perovskit yang digunakan dalam reaksi POM. Membran ini menghantarkan ion oksigen melalui perpindahan ion-ion oksigen penyusun kisi kristalnya, bukan melalui pori-pori seperti membran pada umumnya sehingga membran oksida perovskit harus rapat. Membran yang rapat juga memiliki kekuatan mekanik yang baik. Kekuatan mekanik membran semakin besar seiring dengan ketebalan membran, namun membran yang semakin tebal memiliki fluks permeasi oksigen yang semakin kecil. Sebaliknya, membran yang tipis memiliki fluks permeasi oksigen yang lebih tinggi namun rapuh. Untuk mengatasi hal tersebut maka membran asimetris, yaitu membran yang memiliki paling sedikit dua bagian di mana salah satunya sangat berpori dan lebih tebal yang sekaligus berfungsi sebagai penopang bagian lainnya yang lebih tipis namun rapat, menjadi alternatif solusi yang banyak dipilih oleh para peneliti. Pori-pori pada bagian pendukung menjadi jalur difusi oksigen dari udara di salah satu sisi membran ke permukaan dalam bagian rapat membran. Setelah itu, oksigen

tersebut berdifusi ke permukaan pada sisi lain membran melalui kisi kristal oksida perovskit pada bagian rapat yang tipis (Chien dkk., 2008).

Pembuatan membran asimetris dapat dilakukan dengan beberapa metode, salah satunya adalah metode inversi fasa. Metode ini banyak dipilih untuk pembuatan membran asimetris karena dianggap fleksibel dan mudah diaplikasikan dalam pembuatan membran anorganik. Inversi fasa adalah proses dimana larutan polimer mengalami perubahan dari fasa cair menuju fasa padatan akibat perubahan pelarut. Pada metode ini terdapat 3 komponen penyusun penting yakni polimer, pelarut dan non-pelarut. Ketika proses inversi fasa terjadi, satu fasa larutan polimer terkonversi menjadi dua yaitu fasa padat (mengandung banyak polimer) yang membentuk struktur membran dan fasa cair (mengandung sedikit polimer) yang membentuk pori (Strathmann dkk., 1975). Hal inilah yang menyebabkan terbentuknya membran asimetris.

Morfologi membran asimetris perovskit yang dihasilkan dipengaruhi oleh beberapa hal antara lain faktor non-pelarut atau koagulan yang digunakan (Tan dkk., 2011), ukuran partikel *filler* (oksida perovskit) (Husnah, 2014) dan konsentrasi polimer (Bakeri dkk., 2010). Selain faktor-faktor utama tersebut, morfologi membran juga dapat dimodifikasi dengan penambahan aditif, baik pada pelarut maupun non pelarut.

Aditif merupakan komponen tambahan yang ditambahkan ke dalam larutan polimer dengan jumlah yang relatif kecil. Penambahan aditif pada membran dapat memodifikasi sifat mekanik, fisika dan kimia dari membran asimetris (Kim dkk., 1998). Yusran (2015) melaporkan penambahan aditif yang berbeda menghasilkan morfologi membran asimetris yang berbeda. Meskipun jumlah aditif yang ditambahkan pada pembuatan membran dengan metode inversi fasa relatif sedikit, namun cukup berpengaruh pada morfologi membran asimetris yang dihasilkan.

Berbagai senyawa anorganik (seperti LiCl) dan senyawa organik dengan berat molekul besar (seperti Poli Vinil Pirolidon (PVP) atau Poli etilen glikol (PEG)) banyak digunakan dalam pembuatan membran asimetris dengan metode inversi fasa. Senyawa-senyawa tersebut bertindak sebagai non-pelarut yang ditambahkan ke dalam larutan polimer, atau sering disebut aditif. Sebagai aditif senyawa-senyawa ini berfungsi untuk membentuk pori, meningkatkan viskositas larutan *casting* atau mempercepat proses inversi fasa. Hal ini disebabkan karena adanya interaksi antara aditif dengan komponen-komponen lain selama proses inversi fasa terjadi (Lalia dkk., 2013).

Fontananova dkk. (2006) melaporkan bahwa konsentrasi aditif yang ditambahkan ke dalam larutan *casting* berpengaruh terhadap morfologi membran yang dihasilkan. Dalam penelitiannya dijelaskan saat konsentrasi LiCl dan PVP dalam larutan *casting* PVDF-DMA (Poli Vinil Diflorida – Dimetil Asetamida) bertambah, maka membran yang terbentuk memiliki ukuran pori yang lebih kecil. Selain konsentrasi, jenis aditif yang digunakan juga berpengaruh terhadap morfologi membran. Chakrabarty dkk. (2008) menggunakan PEG dengan berat molekul yang berbeda, yakni 400, 6000 dan 20000, sebagai aditif pada larutan *casting* membran polimer PSf-NMP (Poli Sulfon - N-Metil-2-Pirolidon) dan PSf-DMA (Poli Sulfon - Dimetil Asetamida). Dalam penelitian tersebut dilaporkan bahwa semakin besar berat molekul PEG yang digunakan, maka membran yang dihasilkan memiliki ukuran jari-jari pori yang semakin kecil.

Berdasarkan beberapa uraian di atas diketahui bahwa penambahan aditif dapat berpengaruh terhadap morfologi membran asimetris polimer. Namun, belum banyak ditemukan tentang pengaruhnya terhadap pembentukan membran oksida perovskit. Oleh karena itu, dalam penelitian ini dipelajari pengaruh penambahan aditif terhadap pembentukan morfologi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428.

## 1.2 Permasalahan

Berdasarkan uraian di atas maka permasalahan yang di akan diselesaikan pada penelitian ini adalah bagaimanakah metode inversi fasa yang dapat menghasilkan morfologi membran asimetris perovskit yang baik dan memiliki kekuatan mekanik yang memadai dengan cara pengontrolan penambahan aditif Poli etilen glikol (PEG) pada larutan polimer yang telah dicampur serbuk  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ .

## 1.3 Batasan Masalah

Pada penelitian ini digunakan oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  yang disintesis dengan metode yang telah dilaporkan sebelumnya oleh Nurherdiana dkk. (2017). Poli ethersulfon (PESf) sebagai bahan utama membran yang berfungsi sebagai polimer perekat, dimetil sulfoksida (DMSO) sebagai pelarut polimer, dan Aqua DM sebagai non pelarut/koagulan. Aditif yang digunakan adalah PEG 6000 dan 8000 untuk mengetahui pengaruh berat molekul aditif terhadap morfologi membran serta variasi konsentrasi aditif sebesar 0 %; 0,23 %; 0,39 % dan 0,55 % seperti yang telah dilaporkan Utami (2014) pada jenis membran oksida perovskit yang berbeda.

## 1.4 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk memperoleh metode inversi fasa yang dapat menghasilkan membran asimetris dengan morfologi tertentu dengan kekuatan mekanik yang memadai, yang dikontrol dengan penambahan aditif Poli etilen glikol (PEG) pada larutan polimer yang telah dicampur dengan serbuk  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ .

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

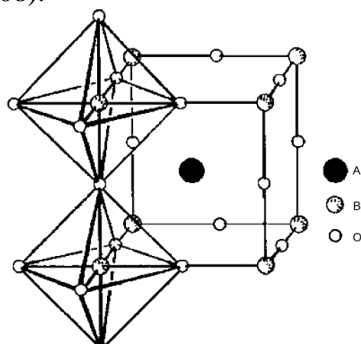
## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Oksida Perovskit

Material perovskit merupakan komponen terpenting dalam pembuatan membran transport oksigen. Perovskit memiliki kemampuan berupa dapat melakukan transport ion oksigen dan elektron secara bersamaan. Oleh karena itu, perovskit dikenal dengan istilah *mixed ionic and electronics conductors* (MIEC) (Athayde dkk., 2016).

Istilah perovskit pertama kali dikenalkan oleh seorang ahli geologi asal Rusia bernama Count Lev Aleksevich von Perovski. Secara umum, oksida perovskit memiliki rumus  $ABO_3$  dengan struktur seperti pada Gambar 2.1. Oksida perovskit yang ideal digambarkan tipe  $SrTiO_3$  dimana Sr sebagai kation sisi A terletak di tengah kubus dikelilingi oleh 12 atom oksigen yang terletak di tengah sisi kubus dengan jarak yang sama dan Ti sebagai kation sisi B terletak di sudut kubus dikelilingi oleh 6 atom oksigen dengan jarak yang sama membentuk oktahedral secara 3 dimensi (Sunarso dkk., 2008).



Gambar 2. 1 Struktur Oksida Perovskit (Feng dkk., 2008)

Kation sisi A pada oksida perovskit yang digunakan untuk permeasi oksigen biasanya diisi oleh unsur-unsur tanah jarang, alkali atau pun alkali tanah, seperti La, Na, Ca, Sr, atau Ba.

Sementara sisi B biasanya diisi oleh unsur logam transisi (Burgraaf dan Cot, 1996). Jika struktur  $ABO_3$  tidak menunjukkan sifat konduksi ionik yang baik, maka dapat dilakukan substitusi parsial pada sisi A dan/ atau B. Hal itu dapat menciptakan *point defect* atau kisi oksigen pada struktur perovskit yang dapat memberikan konduktansi ion oksigen. Strategi ini adalah strategi yang tepat guna meningkatkan performa membran perovskit (Wang dkk., 2002 dan Haworth dkk., 2011).

Setiap perovskit yang ideal memiliki rumus komposisi  $A^{2+}B^{4+}O_3$  (mungkin juga  $A^{1+}B^{5+}O_3$  atau  $A^{3+}B^{3+}O_3$ ) dengan jari-jari kation A yang besar dan B yang lebih kecil (Muller dan Roy, 1974). Pada tahun 1926, Goldschmidt memperkenalkan “faktor toleransi” untuk mempelajari stabilitas perovskit. Besarnya faktor toleransi dinyatakan dengan t pada persamaan 2.1.

$$t = \frac{(rA + rO)}{\sqrt{2}(rB + rO)} \quad (2.1)$$

dimana  $rA$ ,  $rB$  dan  $rO$  secara berurutan adalah jari-jari ion A, B dan O. Secara geometri, oksida perovskit yang ideal memiliki perbandingan panjang ikatan A-O : B-O sama dengan  $\sqrt{2} : 1$ . Jika panjang ikatan diasumsikan sebagai jumlah jari-jari 2 ion, maka nilai faktor toleransi dari perovskit kubus harusnya sama dengan 1. Goldschmidt menyatakan bahwa nilai faktor toleransi oksida perovskit adalah 0,8-1,0.

Selain faktor toleransi Goldschmidt, faktor oktahedron merupakan parameter yang sama penting untuk diperhatikan guna mendapatkan struktur perovskit. Secara umum jika 1 kation M dan 6 anion X membentuk sebuah oktahedron  $MX_6$ , maka perbandingan jari-jari ioniknya  $r_M/r_X$  harus tetap dalam batas rentang 0,414-0,732. Oleh karena itu, faktor oktahedron ini merupakan faktor yang sama pentingnya dengan faktor toleransi Goldschmidt (Feng dkk., 2008).

Perovskit dapat disintesis dengan banyak cara. Beberapa metode yang dapat digunakan untuk sintesis oksida perovskit,

diantaranya reaksi keadaan padat, ko-presipitasi, hidrotermal, *spray freeze drying*, dan proses sol-gel (Cousin dan Ross, 1990). Mikrostruktur perovskit yang didapatkan pada setiap metode menghasilkan efek yang signifikan terhadap sifat konduksi elektronik dan ioniknya. Oleh karena itu, pemilihan metode sintesis merupakan hal yang penting bagi performa membran transport oksigen (Sunarso dkk., 2008).

## 2.2 Oksida Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$

Fluks permeasi oksigen adalah salah satu parameter terpenting bagi material oksida perovskit sebagai membran penghantar ionik dan elektronik. Fluks oksigen yang tinggi bergantung pada jumlah kekosongan oksigen yang dimiliki. Substitusi parsial sisi A dan/ atau B dari oksida perovskit adalah strategi yang tepat untuk meningkatkan fluks oksigen. Ketika di doping dengan kation yang berbeda, rumus perovskit menjadi  $\text{A}_x\text{A}'_{1-x}\text{B}_y\text{B}'_{1-y}\text{O}_{3-\delta}$ . Simbol  $\delta$  menunjukkan konsentrasi kekosongan oksigen dalam struktur, sedangkan x dan y memiliki nilai yang bervariasi dari 0 sampai 1. Telah banyak penelitian yang dilakukan untuk mendapatkan material oksida perovskit yang memiliki fluks permeasi oksigen yang baik serta menjanjikan secara ekonomi dengan strategi ini. Oksida perovskit tipe BSCF dan LSCF adalah dua tipe yang paling banyak dilaporkan (Athayde dkk., 2016).

Oksida perovskit tipe  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (BSCF) dan  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) adalah dua jenis oksida perovskit yang banyak diteliti oleh para peneliti. Oksida perovskit BSCF dipilih karena memiliki sifat penghantar ionik dan elektronik yang baik (Wang dkk., 2002). Namun, BSCF memiliki stabilitas yang kurang baik (Santos dkk., 2011). Oksida perovskit tipe LSCF banyak dipilih karena memiliki stabilitas mekanik maupun kimia yang baik serta fluks permeasi oksigen yang tidak buruk (Lane dkk., 1999). Sifat inilah yang menyebabkan oksida perovskit LSCF banyak digunakan sebagai membran transport oksigen.



Teraoka dkk. (1985) melaporkan bahwa fluks permeasi oksigen oksida perovskit tipe  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) yang tertinggi didapatkan saat  $x = 1$  dan  $y = 0,2$ . Substitusi total kation logam  $\text{La}^{3+}$  oleh  $\text{Sr}^{2+}$  menciptakan sebuah kekosongan oksigen dalam kisi yang menyebabkan peningkatan laju oksigen melewati membran, sehingga menghasilkan oksigen permeasi yang lebih banyak dalam waktu yang sama. Namun, Pei (1995) melaporkan bahwa oksida perovskit  $\text{SrCo}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  memiliki sifat yang tidak stabil secara mekanik dan kimia saat digunakan untuk sintesis syngas dengan reaksi *partial oxidation of Methane* (POM).

Nilai  $x$  dan  $y$  pada oksida perovskit tipe  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) sangat berpengaruh terhadap sifat mekanik maupun kimia dari oksida perovskit itu sendiri. Substitusi ion alkali tanah pada sisi A berpengaruh terhadap non-stokiometri oksigen perovskit (Mizusaki dkk., 1989). Penambahan kandungan Stronsium (Sr) pada sisi A menunjukkan peningkatan kekosongan oksigen pada oksida perovskit seperti yang dilaporkan Lankhorst dan Elshof (1997). Semetara itu, sisi B dapat mengoptimalkan sifat katalitik oksida perovskit untuk reaksi oksidasi (Shao dkk., 2000).

Telah banyak membran oksida perovskit tipe LSCF yang dilaporkan oleh para peneliti. Teraoka dkk. (1985) melaporkan bahwa semakin banyak kandungan Sr dan Co menghasilkan fluks permeasi oksigen yang semakin tinggi. Namun, bertambahnya kandungan Sr dan Co juga dapat menurunkan sifat mekanik dari membran perovskit LSCF (Petric dkk., 2000). Sementara itu, adanya La dibutuhkan guna stabilitas dari material oksida perovskit LSCF (LU dkk., 2000).

$\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 6428) adalah salah satu oksida perovskit yang banyak digunakan sebagai membran transport oksigen. Alasan oksida perovskit LSCF 6428 banyak digunakan adalah oksida perovskit jenis ini memiliki stabilitas kimia dan mekanik yang tinggi (Jin dkk., 2000). Tan dkk. (2010) melakukan penelitian tentang pengaruh suhu sintering terhadap membran serat berongga LSCF 6428. Pada penelitian tersebut dilaporkan bahwa struktur kristal oksida perovskit LSCF 6428 masih terjaga

dengan baik meskipun telah disinter pada suhu 1300°C selama 8 jam, bahkan sampai suhu 1500 °C selama 4 jam pun strukturnya masih terjaga dengan baik. Pada penelitian lain, Tan dkk. (2011) melaporkan bahwa membran serat berongga oksida perovskit LSCF 6428 memiliki kekuatan mekanik sampai 154 MPa yang diukur dengan instrumen *three point bending*.

Selain memiliki kestabilan kimia dan mekanik yang baik, oksida perovskit LSCF 6428 juga memiliki sifat permeabilitas oksigen yang baik pula. Dengan kombinasi oksida perovskit LSCF 6428 dan katalis NiO/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada satu membran mengonversikan CH<sub>4</sub> menjadi syngas melalui reaksi *partial oxidation of methane* dengan selektivitas CH<sub>4</sub> dan CO masing-masing lebih dari 96 % dan 97 %. Pada reaksi ini oksida perovskit berperan sebagai penyedia oksigen (Jin dkk., 2000).

## 2.3 Membran

Secara umum membran dapat didefinisikan sebagai pemisah yang selektif antara dua fasa. Teknologi ini digunakan pada banyak proses pemisahan. Sebuah membran dapat berupa lapisan tebal atau tipis, strukturnya dapat homogen atau heterogen, dan transportnya dapat pasif atau aktif. Transport pasif dikendalikan dengan perbedaan tekanan konsentrasi atau suhu. Selain itu, membran juga bisa terbuat secara alami maupun sintesis, netral ataupun bermuatan. Teknologi membran memiliki banyak keuntungan, antara lain :

- pemisahan dapat dilakukan secara kontinu,
- secara umum hanya membutuhkan energi yang rendah,
- proses pemisahan dapat dengan mudah dikombinasikan dengan proses pemisahan lain,
- pemisahan dapat dilakukan di kondisi normal,
- sifat membran bervariasi dan dapat diatur,
- tidak membutuhkan bahan tambahan (Mulder, 1996).

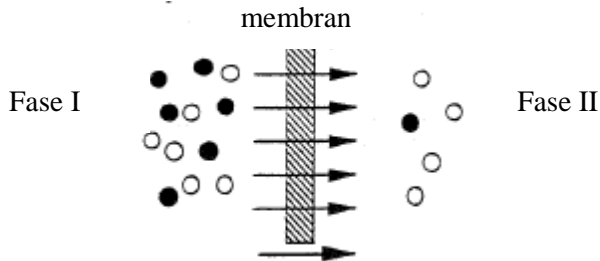
Membran dapat dikelompokkan dengan berbagai sudut pandang. Menurut pembuatannya, membran dapat diklasifikasikan menjadi membran alami dan membran buatan

atau sintetis (Mulder, 1996). Membran sintetis itu sendiri dapat diklasifikasikan sebagai berikut :

- Menurut material penyusun membran: membran polimer organik, membran anorganik (oksida, keramik, logam), membran komposit organik-anorganik.
- Menurut morfologi penampang lintangnya: Membran simetris (relatif tebal sekitar 50-500  $\mu\text{m}$  dan berasal dari 1 material penyusun), membran asimetris ( biasanya tipis, hanya beberapa  $\mu\text{m}$ , memiliki 2 atau lebih lapisan dengan morfologi yang berbeda, berasal dari material yang sama), membran komposit matriks campuran 2 atau multi layer.
- Metode preparasi: inversi fasa larutan polimer, proses sol-gel untuk material anorganik atau organik-anorganik, reaksi penghubung untuk lapisan tipis komposit, ekstruksi fabrikasi mikro
- Bentuk membran: membran datar, membran serat berongga, membran lembaran berongga, kapsul.

(Ulbrich dkk., 2004)

Membran adalah inti dari setiap proses membran dan dapat dianggap sebagai pemisah yang selektif antara 2 fase. Skema pemisahan membran dapat ditunjukkan oleh Gambar 2.2.



Gambar 2. 2 Skema pemisahan dua fasa dengan membran (Mulder, 1996)

Fase I biasa disebut sebagai fase *feed* atau fase hulu dan fase II adalah sisi permeat atau fase hilir. Pemisahan terjadi karena

membran memiliki kemampuan untuk transpor satu komponen dari campuran *feed* dari pada komponen lain.

Kemampuan atau efisiensi membran ditentukan oleh dua parameter, yaitu selektivitas dan aliran zat melewati membran. Fluks atau laju permeasi didefinisikan sebagai volume aliran melewati membran persatuan luas dan waktu. Selektivitas membran untuk sebuah campuran secara umum ditunjukkan oleh satu atau dua parameter, yakni retensi ( $R$ ) atau faktor pemisahan ( $\alpha$ ). Untuk campuran cairan yang encer yang mengandung pelarut (kebanyakan air) dan zat terlarut, selektivitas lebih cocok diekspresikan dengan retensi untuk zat terlarut. Zat terlarut secara parsial atau seluruhnya tertahan saat pelarut (air) molekul melewati membran. Besarnya retensi ( $R$ ) ditunjukkan oleh persamaan 2.2.

$$R = \frac{C_f - C_p}{C_f} = 1 - \frac{C_p}{C_f} \quad (2.2)$$

dimana  $C_f$  adalah konsentrasi zat terlarut sisi hulu atau sisi *feed* dan  $C_p$  adalah konsentrasi zat terlarut sisi permeat atau sisi hilir. Nilai  $R$  tidak tergantung pada satuan konsentrasi. Nilai  $R$  bervariasi antara 0-100 %.

Selektivitas membran untuk campuran gas dan cairan organik biasanya diekspresikan dengan istilah faktor pemisahan ( $\alpha$ ). Untuk campuran yang mengandung komponen A dan B, faktor selektivitasnya ditunjukkan dengan  $\alpha_{A/B}$ . Besarnya  $\alpha_{A/B}$  ditunjukkan oleh persamaan 2.3.

$$\alpha_{A/B} = \frac{Y_A/Y_B}{X_A/X_B} \quad (2.3)$$

dimana  $Y_A$  dan  $Y_B$  adalah konsentrasi komponen A dan B pada sisi permeat, sedangkan  $X_A$  dan  $X_B$  adalah konsentrasi komponen pada sisi hulu/*feed* (Mulder, 1996).

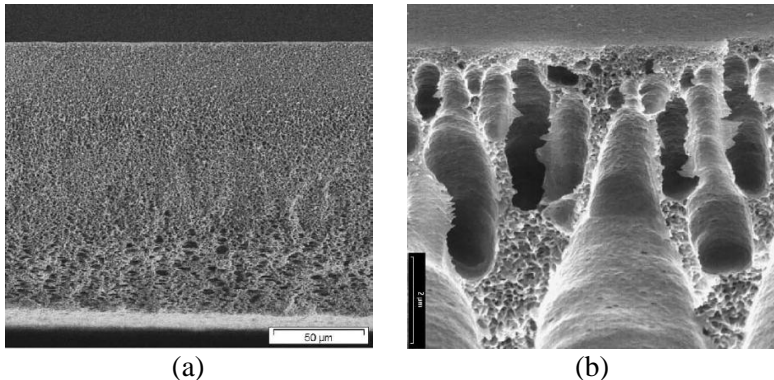
## 2.4 Membran Asimetris

Berdasarkan morfologi penampang melintangnya membran dibedakan menjadi 2, yakni membran simetris dan membran asimetris (Gambar 2.3). Membran simetris adalah membran yang memiliki morfologi seragam di seluruh bagiannya (berpori atau rapat). Membran jenis ini biasanya tebal. Kemampuan transfer zat membran ini ditentukan oleh ketebalan membran. Semakin tebal membran, maka kemampuan transfer zatnya semakin berkurang (Mulder, 1996).

Membran asimetris secara umum dapat didefinisikan sebagai membran yang memiliki lapisan intermediet mesopori dan lapisan atas mikropori (atau rapat). Lapisan bawah memberikan sifat mekanik membran. Lapisan tengah bertindak sebagai penjembutan ukuran pori yang berbeda diantara lapisan pendukung dan lapisan atas. Sedangkan lapisan atas adalah lapisan dimana proses pemisahan terjadi (Chien dkk., 2008). Membran asimetris biasanya memiliki lapisan atas atau lapisan “kulit” dengan ketebalan 0,1-5  $\mu\text{m}$  dan substruktur berpori dengan ketebalan 100-300  $\mu\text{m}$ . Sifat material dan ukuran pori pada lapisan “kulit” menentukan karakteristik pemisahan membran tersebut, sedangkan sub-lapisan berpori hanya sebagai pendukung lapisan “kulit” yang tipis dan rapuh serta berdampak kecil terhadap karakteristik pemisahan atau laju transfer massa membran. Karena memiliki beberapa bentuk morfologi, membran asimetris memiliki sifat yang unik, yakni memiliki fluks permeasi yang tinggi dan stabilitas mekanik yang baik (Strathmann, 2011). Sifat inilah yang menyebabkan membran asimetris banyak digunakan dan dikembangkan di bidang industri.

Membran asimetris dapat dibuat dengan 2 teknik. Teknik pertama adalah preparasi membran asimetris dengan teknik berbasis proses inversi fasa. Dengan teknik inversi fasa ini sebuah membran memiliki struktur kulit dan pendukung yang terbuat dari material yang sama dan terjadi dalam sebuah proses tunggal. Teknik lain yang dapat digunakan untuk preparasi membran

asimetris adalah teknik semacam komposit, dimana sebuah lapisan pemisah yang tipis terdeposit pada sebuah struktur berpori dan terjadi dalam 2 tahap proses. Dalam teknik ini lapisan pemisah dan lapisan pendukung umumnya terbuat dari material yang berbeda (Strathmann, 2011).



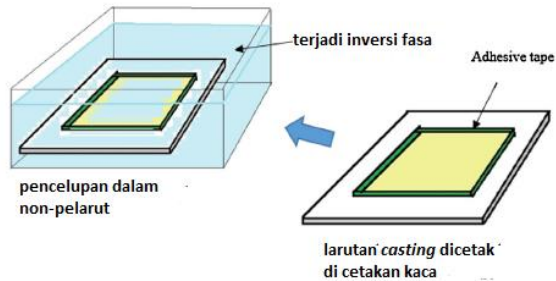
Gambar 2. 3 Foto SEM (a) membran simetris, (b) membran asimetris (Ulbricht dkk., 2004)

## 2.5 Inversi Fasa Rendam endap-Sintering

Inversi fasa adalah proses dimana suatu polimer bertransformasi secara terkontrol dari fase cairan menjadi fase padat. Proses pemadatan sangat sering diinisiasi dengan transisi dari keadaan satu cairan menjadi keadaan dua cairan (pemisahan cair-cair) atau sering disebut *demixing*. Selama pada keadaan pemisahan, salah satu fasa cair (fase dengan konsentrasi polimer yang tinggi) akan memadat sehingga membentuk matriks yang padat. Morfologi membran yang dibuat dapat dikontrol dengan mengontrol keadaan awal transisi fasa (Mulder, 1996).

Terdapat beberapa teknik dalam preparasi membran asimetris dengan cara inversi fasa seperti teknik penguapan pelarut, pemadatan dengan penguapan terkontrol, pemadatan termal, penguapan dari fasa uap dan pemadatan dengan pencelupan atau biasa disebut dengan rendam endap. Teknik

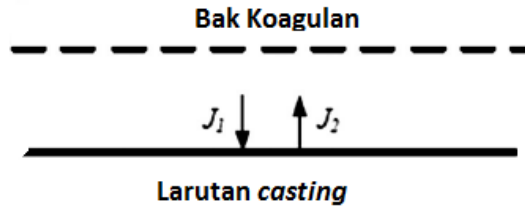
inversi fasa rendam endap inilah yang banyak digunakan (Mulder, 1996). Inversi fasa rendam endap adalah proses dimana larutan polimer atau larutan *casting* dicelupkan ke dalam bak koagulan yang berisi non-pelarut (seperti ditunjukkan pada Gambar 2.4).



Gambar 2. 4 Tahapan proses pencetakan membran dengan teknik inversi fasa rendam endap (Hubadilla, dkk., 2016)

Selama pencelupan larutan *casting* ke dalam bak koagulan terjadi pertukaran antara pelarut dan non-pelarut. Proses pertukaran pelarut dan non-pelarut yang terjadi selama pencelupan ditunjukkan pada Gambar 2.5. pelarut berdifusi ke dalam bak koagulan dengan flux  $J_2$  dan non-pelarut berdifusi ke dalam larutan polimer/ *casting* dengan flux  $J_1$ . Setelah beberapa saat terjadi pertukaran pelarut dan non-pelarut larutan menjadi kurang stabil secara termodinamika dan terjadilah *demixing* menjadi 2 fasa. Fasa yang kaya akan polimer akan mengeras membentuk struktur membran dan fasa yang lain akan membentuk pori. Akhirnya, terbentuklah membran polimer padat berbentuk film dengan struktur asimetris. Laju difusi pergantian pelarut dan non-pelarut mempengaruhi terbentuknya struktur membran asimetris. Jika  $J_2 \gg J_1$  maka biasanya akan membentuk membran ultrafiltrasi dengan struktur menjari (*fingerlike*) berukuran pori 10-300 Å. Jika  $J_2 = J_1$  maka membran yang didapatkan adalah membran mikrofiltrasi dengan ukuran pori 0,2-0,5 µm (Lalia dkk., 2013). Sebaliknya, jika  $J_2 < J_1$ , maka akan

membentuk membran asimetris dengan sturktur seperti spon (*spongelike*) (Tan, dkk., 2011).



Gambar 2. 5 Proses pertukaran pelarut dan non-pelarut (Lalia dkk., 2013)

Dalam metode inversi fasa terdapat beberapa faktor yang dapat mempengaruhi morfologi membran yang dihasilkan. Faktor-faktor tersebut antara lain :

a. Jenis Polimer

Pada teknik inversi fasa tidak semua jenis polimer dapat digunakan. Jenis polimer dan kopolimer yang digunakan juga dapat mempengaruhi struktur membran, termasuk morfologi bagian dalam dan permukaan meskipun teknik preparasi yang digunakan sama persis (Khayet dkk., 2011). Seperti yang dilaporkan Feng dkk. (2004) bahwa penggunaan polimer PVDF dan PVDF-TFE pada 2 membran berbeda yang dibuat dengan metode preparasi yang sama menghasilkan morfologi yang berbeda. Membran yang menggunakan polimer dan kopolimer PVDF-TFE memiliki ukuran pori yang lebih kecil dibandingkan dengan membran yang dibuat dengan polimer PVDF. Dengan perbedaan morfologi yang signifikan antara 2 membran ini, tentunya menghasilkan fluks dan kekuatan mekanik yang berbeda pula diantara keduanya.

b. Konsentrasi polimer

Konsentrasi polimer pada larutan awal merupakan salah satu faktor yang sangat berpengaruh terhadap struktur membran yang dibuat. Konsentrasi polimer yang semakin bertambah,



menyebabkan ukuran pori dan porositas membran yang semakin menurun (Khayet dkk., 2011). Hal serupa juga dilaporkan Bakeri dkk. (2010) yang membuat membran polimer Poli eterimida (PEI) dengan konsentrasi yang bervariasi antara 10-15 %. Membran dengan konsentrasi PEI yang lebih besar memiliki ukuran pori dan porositas permukaan efektif yang lebih kecil. Hal ini membuat fluks permeasi membran juga menjadi lebih kecil.

c. Aditif Non-Pelarut dan konsentrasinya

Pada metode inversi fasa, aditif non-pelarut pada larutan awal bertindak sebagai agen pembentuk pori pada membran. Pori yang terbentuk akan mempengaruhi kemampuan selektivitas dan permeabilitas dari membran tersebut (Khayet dkk., 2011). Secara umum, saat konsentrasi aditif non-pelarut pada larutan awal bertambah maka ruang kosong pada membran juga meningkat yang berakibat pada pengurangan sifat mekanik dari membran tersebut secara drastis (Tomaszewska, 1996).

d. Jenis aditif non-pelarut.

Pembuatan membran dengan metode inversi fasa menggunakan teknik, polimer, pelarut dan koagulan yang sama namun menggunakan aditif non-pelarut yang berbeda juga akan menghasilkan struktur membran yang berbeda pula. Hal tersebut telah dilaporkan Yusran (2014) bahwa dengan prosedur yang sama namun menggunakan aditif yang berbeda-beda, menghasilkan morfologi membran perovskit yang berbeda-beda pula. Pada penelitannya, Yusran menggunakan aditif metanol, etanol dan propanol pada masing-masing membran. Hasilnya menunjukkan bahwa membran perovskit yang menggunakan metanol memiliki pori yang lebih banyak dan teratur dari pada membran yang menggunakan etanol maupun propanol.

e. Pelarut atau campuran pelarut

Pelarut atau campuran pelarut sangat berpengaruh terhadap morfologi dari membran yang dihasilkan. Hal ini

disebabkan karena interaksi antara pelarut-koagulan dan antara pelarut-polimer memainkan operan yang penting terhadap laju pengendapan polimer.

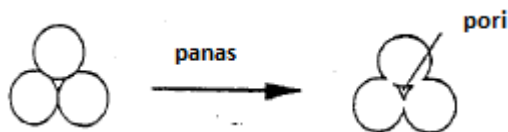
f. Koagulan

Kecepatan pengerasan dari larutan awal (campuran polimer, aditif dan pelarut) mempengaruhi morfologi membran dan struktur akhir dari membran. Laju pengerasan membran dapat dikontrol oleh koagulan yang digunakan. Dalam penelitiannya tentang pembuatan membran perovskit serat berongga dengan metode inversi fasa, Tan dkk (2011) menggunakan komposisi larutan awal yang sama namun koagulan yang dipakai berbeda-beda komposisi. Dari perlakuan tersebut menghasilkan membran yang memiliki morfologi berbeda-beda. Selain itu, suhu dari koagulan juga dapat mengontrol laju pengerasan. Jika suhu koagulan bertambah, maka laju pertukaran pelarut dan non-pelarut menjadi semakin cepat. Hal itu dapat menyebabkan terbentuknya sebuah lapisan kulit yang rapat (Khayet dkk., 2011).

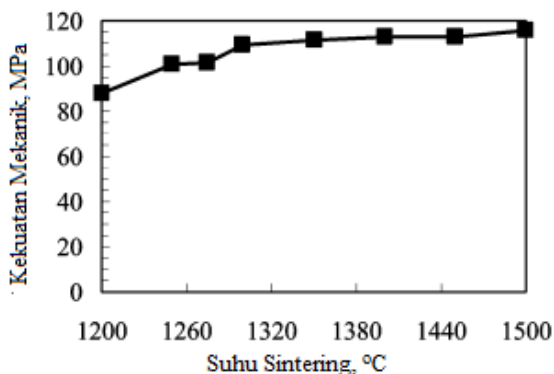
Dalam pembuatan membran keramik dengan metode inversi fasa, langkah selanjutnya yang dilakukan setelah membran mentah terbentuk adalah proses sintering. Sintering merupakan salah satu teknologi manusia tertua yang sudah mulai digunakan sejak pada zaman prasejarah untuk membakar tembikar dan pembuatan peralatan dari bijih besi atau logam. Namun, secara fundamental dan sains sintering baru dipelajari pada sekitar tahun 1940-an (Kang, 2005).

Sintering adalah teknik yang digunakan untuk membuat material dengan densitas terkontrol dan komponen dari serbuk logam dan/ atau keramik dengan memanfaatkan energi termal (Kang, 2005). Jarak antar partikel yang saling kontak menjadi lebih kecil, bahkan hilang selama proses sintering seperti ditunjukkan pada Gambar 2.6 (Mulder, 1996). Sintering merupakan salah satu tahapan penting dalam pembuatan membran keramik. Tan dkk. (2010) menjelaskan bahwa

perlakuan suhu sintering yang berbeda dapat menghasilkan membran dengan morfologi yang berbeda pula. Semakin tinggi suhu sintering maka menghasilkan membran dengan ukuran butir yang lebih kecil. Hal tersebut menyebabkan fluks permeasi membran tersebut juga semakin kecil. Selain itu, hal tersebut juga membuat kekuatan mekanik membran juga semakin meningkat seperti ditunjukkan Gambar 2.7.



Gambar 2.6 Partikel selama proses sintering (Mulder, 1996)



Gambar 2.7 Pengaruh Suhu sintering terhadap kekuatan mekanik membran perovskit (Tan dkk., 2010)

Membran perovskit yang dibuat dengan metode inversi fasa membutuhkan sintering pada suhu lebih dari 1000 °C. Hal ini dikarenakan selama proses sintering terjadi beberapa reaksi. Reaksi-reaksi tersebut antara lain adalah reaksi dekomposisi pelarut yang masih tertinggal di dalam membran, reaksi dekomposisi polimer dan reaksi pemadatan membran. Hal tersebut dapat diketahui dengan analisis termal gravimetri. (Machfudzoh, 2014).

## 2.6 Difraksi Sinar-X

Sinar X merupakan radiasi elektromagnetik yang memiliki energi foton antara 0,1-100 keV. Sinar ini digunakan dalam berbagai bidang di kehidupan sehari-hari, seperti bidang kesehatan, keamanan, sains, dll. Dalam bidang kesehatan sinar ini digunakan untuk mendiagnosis penyakit di dalam tubuh manusia atau yang lebih dikenal dengan rontgen. Dalam bidang keamanan sinar X digunakan untuk memeriksa apakah isi barang bawaan terdapat benda berbahaya atau tidak. Dalam bidang sains, sinar X digunakan untuk menganalisis komposisi unsur-unsur kimia suatu bahan/ zat dan juga mineralogi/ struktur kristal dari suatu bahan dengan metode difraksi (Prasetyoko dkk., 2016).

Teknik difraksi (biasanya menggunakan sinar X) adalah salah satu metode penting dalam kimia anorganik yang digunakan untuk menentukan struktur. Difraksi sinar X telah digunakan untuk menentukan 25000 substansi berbeda, termasuk 10000 senyawa anorganik murni dan banyak senyawa organologam. Metode ini digunakan untuk menentukan posisi atom dan ion yang menyusun suatu senyawa padatan, sehingga dengan metode ini dapat memberikan gambaran atau deskripsi ciri-ciri suatu struktur, seperti panjang ikatan, sudut ikatan serta posisi relatif ion dan molekul dalam sebuah unit sel. Informasi struktural tersebut dapat diinterpretasikan untuk memprediksi struktur dan menjelaskansifat-sifat suatu gejala (Atkins dkk., 2010).

Pada aplikasi difraksi sinar X, hanya sinar X dengan panjang gelombang sampai 0,1 Å (1-120 keV) yang digunakan karena sinar X berenergi tinggi ini mampu menembus hingga ke bagian dalam material sehingga dapat memberikan informasi tentang struktur susunan atom-atom material tersebut secara utuh, bukan hanya permukaan saja. Sinar X dihasilkan ketika berkas elektron yang dipercepat dengan medan bervoltase tinggi diarahkan untuk menumbuk suatu target padatan (umumnya Cu dan Mo) sehingga elektron-elektron tersebut mengalami perlambatan sekaligus melepas sinar X dengan spektrum kontinyu yang disebut radiasi Bremsstrahlung. Selain itu, elektron-elektron berenergi tinggi

tersebut juga dapat melontarkan elektron-elektron pada kulit terdalam pada atom-atom padatan target melalui proses ionisasi. Hal ini membuat elektron-elektron bebas di kulit yang lebih luar dapat mengisi kekosongan elektron di kulit terdalam. Untuk mengisi kekosongan elektron terdalam, elektron kulit yang lebih luar melepaskan sinar X yang bersifat diskrit dan khas untuk padatan target yang digunakan. Proses menghasilkan sinar X terjadi di tabung sinar X.

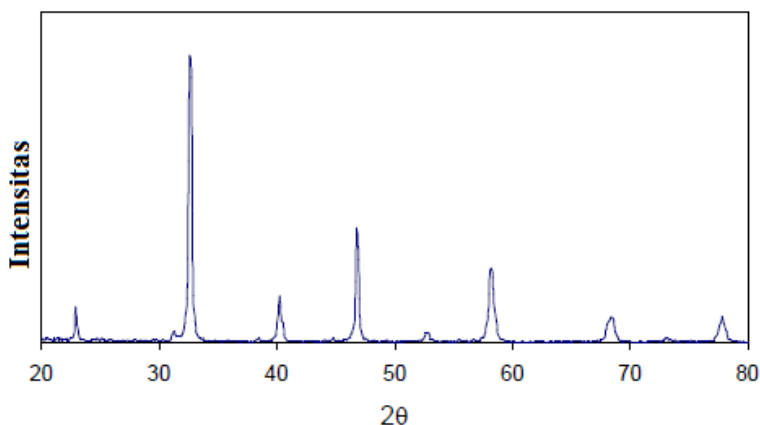
Berkas sinar X monokromatik (sinar X dengan panjang gelombang tertentu) yang menumbuk suatu material akan dipantulkan oleh atom-atom penyusun material tersebut sesuai hukum pemantulan sinar tampak pada cermin. Jika atom-atom material tersebut tersusun rapi dan berulang, maka akan menghasilkan suatu pola pantulan yang berulang serta mengikuti kaidah difraksi sinar tampak oleh celah sempit. Pola difraksi adalah pola gelap-terang sinar yang dipantulkan karena interaksi berkas sinar yang saling menguatkan-melemahkan. Pola terang terjadi ketika dua atau lebih sinar saling menguatkan karena memiliki panjang dan fasa gelombang yang sama. Sementara itu, pola gelap terjadi saat dua atau lebih sinar saling melemahkan karena memiliki fasa yang berbeda, meskipun panjang gelombangnya sama. Untuk memenuhi kondisi tersebut, maka maka berkas sinar pantulan akan saling menguatkan apabila memenuhi hukum Bragg, sesuai dengan persamaan 2.4.

$$n \lambda = 2 d \sin \theta \quad (2.4)$$

dimana  $n$  adalah orde sinar (bilangan bulat),  $\lambda$  adalah panjang gelombang berkas sinar,  $d$  adalah jarak antar bidang pemantul dan  $\theta$  adalah sudut pantulan (Prasetyoko dkk., 2016).

Difraksi sinar X hanya dapat diaplikasikan untuk padatan kristalin. Hal ini disebabkan karena atom-atom penyusun padatan kristalin tersusun rapi sedemikian rupa sehingga bentuknya menyerupain bidang-bidang dengan jarak antar bidang tertentu dan tiap atom dapat dapat memantulkan berkas sinar X. Struktur

tersebut tidak dimiliki padatan amorf, sehingga teknik ini tidak bisa diterapkan pada padatan amorf. Pola difraksi sinar X dari suatu material kristalin adalah khas dan sesuai dengan struktur kristalnya, seperti contoh pada Gambar 2.8 yang menunjukkan pola difraksi dari struktur kristal oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  yang memiliki bentuk kristal rombohedral. Instrumen yang digunakan untuk teknik difraksi sinar X disebut dengan difraktometer. Difraktometer tersusun atas generator sinar X, goniometer dan detektor yang dilengkapi dengan pembangkit tegangan tinggi (Prasetyoko dkk., 2016).



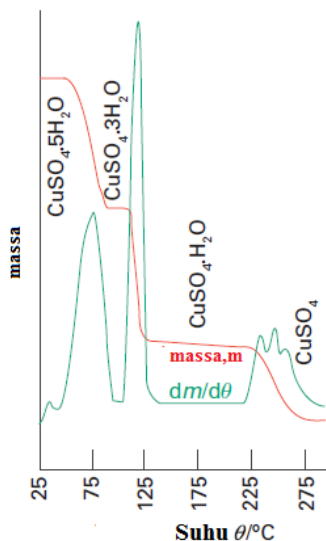
Gambar 2.8 Contoh difraktogram perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (Santos dkk., 2011)

## 2.7 Thermo Gravimetric Analysis-Differential Scanning Calorimetry (TGA-DSC)

Analisis termal adalah analisis perubahan sifat sampel yang dipanaskan. Biasanya analisis ini dilakukan pada sampel padatan. Saat dipanaskan sampel mengalami beberapa perubahan, diantaranya pelelehan, transisi fasa, penguapan dan dekomposisi (Atkins dkk., 2010)

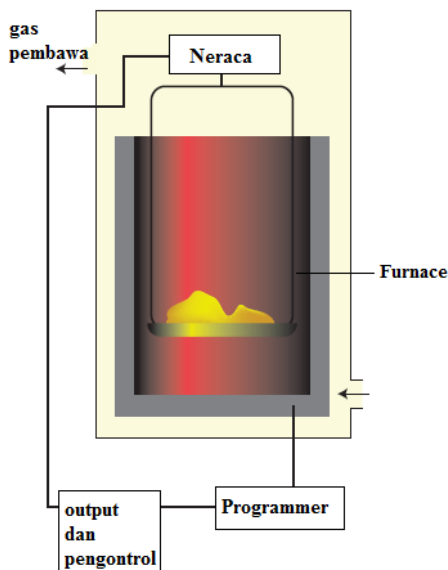
Salah satu analisis termal yang sering digunakan adalah *Thermo Gravimetric Analysis (TGA)*. TGA adalah pengukuran

massa sampel sebagai fungsi suhu atau waktu. Sampel dipanaskan dengan laju pemanasan yang konstan. Sampel yang bermassa  $M_i$  memiliki massa yang konstan, sampai akhirnya mulai terdekomposisi pada suhu  $T_i$ . Dengan suhu yang terus bertambah dengan laju tertentu, proses perubahan massa terjadi pada suatu range suhu  $T_i$ - $T_f$ . Massa sampel akan kembali konstan pada suhu diatas  $T_f$  yang disebut dengan massa residu,  $M_f$ . Massa awal ( $M_i$ ), Massa residu ( $M_f$ ) dan perubahan massa ( $\Delta M$ ) sampel selama pemanasan dapat digunakan untuk kalkulasi kuantitatif perubahan komposisi, mengetahui reaksi yang terjadi, dll (West, 2014). Contoh hasil analisis termal TGA ditunjukkan oleh Gambar 2.9. Gambar 2.9 menunjukkan analisis TGA  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  dari suhu ruang sampai  $300^\circ\text{C}$ . Pada rentang suhu tersebut  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  mengalami 3 tahap kehilangan massa. Tahapan-tahapan kehilangan massa tersebut menunjukkan reaksi dehidrasi  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  menjadi  $\text{CuSO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ , lalu  $\text{CuSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{CuSO}_4$ .



Gambar 2. 9 Contoh Kurva TGA  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  (Atkins dkk., 2010)

TGA terdiri dari beberapa komponen penyusun yang satu sama lain saling berkaitan. Pengukuran massa sampel dilakukan menggunakan neraca termal (*thermobalance*). *Furnace* elektrik dengan suhu terprogram untuk memanaskan sampel dengan suhu tertentu dan kontroler yang memungkinkan sampel dipanaskan dan ditimbang secara bersamaan. Set TGA ditunjukkan seperti Gambar 2.10 (Atkins dkk., 2010).



Gambar 2. 10 Set Prinsip Instrumen TGA (Atkins dkk., 2010)

Analisis termal lain yang sering digunakan adalah DSC (*Differential Scanning Calorimetry*). Pada DSC terdapat 2 material yang diukur, yakni material sampel dan material pembanding. Sampel dibandingkan dengan material pembanding yang inert selama proses pemanasan terprogram. Suhu sampel dan material pembanding dijaga tetap sama dengan menambahkan panas ke sampel atau ke material pembanding jika sampel mengalami perubahan eksotermis. Perubahan entalpi yang

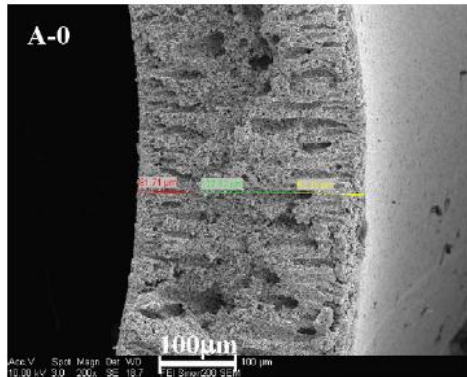


terjadi diukur secara langsung (West, 2014). Peristiwa termal yang terjadi ditandai dengan adanya selisih atau deviasi dari *baseline* DSC yang menunjukkan peristiwa tersebut eksotermis atau endotermis sesuai dengan energi yang diberikan ke sampel dan pembanding. Reaksi endotermis ditunjukkan dengan selisih positif (diatas) *baseline* sesuai dengan peningkatan energi atau panas yang diberikan ke sampel. Sebaliknya, reaksi eksotermis ditunjukkan dengan selisih negatif (dibawah) *baseline* (Atkins dkk., 2010).

## 2.8 Scanning Electron Microscope (SEM)

Mikroskop elektron adalah alat serba guna yang digunakan untuk mengetahui morfologi, struktur dan informasi komposisi lewat perbesaran sebuah jarak atau area. Ada beberapa jenis mikroskop elektron, salah satu yang sering digunakan adalah SEM (*scanning electron microscope*). SEM dapat memenuhi kekurangan yang ada pada mikroskop optik biasa. SEM dapat digunakan untuk mempelajari segi tekstur, topografi dan permukaan sebuah serbuk atau bagian padatan. SEM dapat menghasilkan gambar dengan kualitas 3 dimensi karena *depth of field* yang dimiliki instrumen ini. Selain itu, SEM juga dapat digunakan untuk melihat perbesaran yang tidak bisa dicapai menggunakan mikroskop optik. Mikroskop optik biasa mampu memperbesar benda dengan ukuran  $\sim 1 \mu\text{m}$ , namun dengan menggunakan SEM dapat memperbesar benda dengan ukuran dari  $\sim 10^{-2} \mu\text{m}$  sampai dengan  $\sim 10^2 \mu\text{m}$  (West, 2014)

Penggambaran mikroskop elektron sama halnya dengan mikroskop optik konvensional biasa, tapi dalam kerjanya menggunakan elektron dan menggambarkan foton. Dalam SEM, objek atau sampel dipindai oleh sinar dan kemudian sebaran sinar hasil pemindaian digambarkan oleh detektor. Hasil penggambaran oleh SEM tergantung pada seberapa tajam sinar yang difokuskan ke sampel, bagaimana ia memindai sampel dan seberapa banyak sinar yang mengenai sampel sebelum tersebar (Atkins dkk., 2010). Contoh hasil SEM ditunjukkan oleh Gambar 2.11.



Gambar 2.11 Foto SEM membran serat berongga perovskit LSCF 6428 (Tan dkk., 2011)

Sampel yang akan dilihat menggunakan SEM haruslah konduktif. Hal ini disebabkan prinsip instrumen SEM adalah menggunakan elektron. Jika sampel bersifat non konduktif, maka elektron akan terkumpul pada sampel dan berinteraksi dengan sinar elektron itu sendiri sehingga akan menghasilkan gambar yang tidak jelas atau blur. Untuk menghindari hal tersebut, maka sampel yang bersifat kurang atau non konduktif harus dilapisi dengan lapisan logam yang tipis (biasanya menggunakan emas atau aluminium) terlebih dahulu (Atkins dkk., 2010).

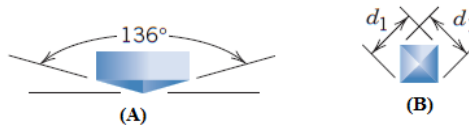
## 2.9 Uji Kekuatan Mekanik (Kekerasan) Membran

Kekuatan mekanik adalah salah satu parameter penting untuk sebuah membran. Sifat mekanik yang penting untuk dipertimbangkan adalah kekerasan. Kekerasan adalah ukuran resistensi suatu bahan untuk berubah bentuk atau deformasi di suatu lokasi atau titik. Uji kekerasan lebih sering dilaporkan dari pada uji mekanik yang lain. Hal ini disebabkan karena beberapa alasan sebagai berikut :

- Mudah dan tidak mahal, biasanya tidak ada sampel yang butuh disiapkan secara khusus serta alat ujinya yang relatif tidak mahal.

- Bukan uji yang destruktif, sampel yang diuji tidak butuh dipatahkan, dihancurkan atau diubah bentuk secara total. Sampel hanya mengalami sedikit lekukan.
- Sifat mekanik lainnya dapat diestimasi dari data kekerasan, seperti kekuatan regangan, dll.

Salah satu metode uji kekerasan yang banyak digunakan adalah *Vickers Hardness*. Terkadang metode ini juga disebut dengan uji intan piramid. Setiap uji dengan metode ini menggunakan indenter (biasanya terbuat dari intan) yang sangat kecil berbentuk piramid yang ditekan ke permukaan sampel, seperti ditunjukkan pada Gambar 2.12. Beban yang digunakan sangatlah kecil, dalam rentang antara 1-1000 g. Lekukan yang dihasilkan dari penekanan sampel dengan intan diamati dengan mikroskop dan diukur. Hasil pengukuran ini kemudian dikonversikan ke sebuah satuan kekerasan. Oleh karena itu, metode uji ini juga disebut juga sebagai uji lekukan mikro yang berbasis ukuran lekukan atau indentasi. Metode *Vickers* ini cocok untuk pengukuran kekerasan pada sampel yang kecil dan titiknya spesifik. Permukaan sampel mungkin butuh dipersiapkan (diasah dan ampelas) secara hati-hati untuk mendapatkan penggambaran yang baik dan pengukuran yang akurat (Callister, 2007).

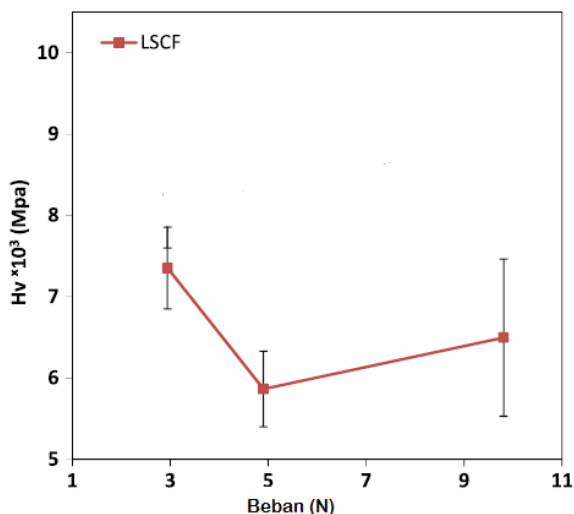


Gambar 2.12 Indenter (A) tampak dari samping, (B) tampak dari bawah (Callister, 2007)

Nilai satuan kekerasan yang dihasilkan dari metode *Vickers Hardness* adalah Hv. Besarnya Hv didapatkan dari besarnya beban uji (P) yang dibagi dengan luas permukaan bekas luka tekan indenter, seperti yang ditunjukkan oleh persamaan 2.5.

$$HV = 1,854 P/d^2 \quad (2.5)$$

Akbari, dkk (2016) melakukan uji kekerasan terhadap oksida perovskit LSCF 6419. Serbuk oksida perovskit LSCF 6419 dibuat bentuk kepingan dengan metode penekanan uniaksial dan sintering. Kepingan yang telah disinter dilakukan uji kekerasan dengan *Vickers microhardness* dengan variasi beban antara 5-10 N dengan waktu penahanan 15 detik dan didapatkan hasil seperti pada Gambar 2.13.



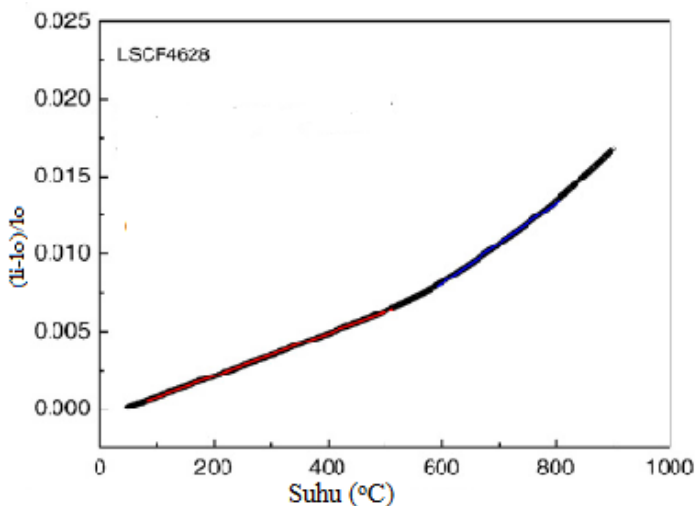
Gambar 2.13 Grafik hasil uji kekerasan dengan MicroHardness kepingan oksida perovskit LSCF 6419 (Akbari, dkk., 2016)

## 2.10 Thermo Mechanical Analysis (TMA)

Analisis termal merupakan pengukuran sifat fisika dan kimia suatu sampel sebagai fungsi suhu. Selain TGA dan DSC, yang telah diterangkan pada sub bab sebelumnya, *thermo mechanical analysis* (TMA) melengkapi teknik analisis termal lainnya. Pada TMA perubahan dimensional dan viskoelastis suatu sampel direkam berdasarkan suhu. Hal ini tidak mungkin didapatkan dari analisis gravimetri (TGA) dan entalpi (DTA dan DSC). (Humphries dkk., 1971)

Analisis termal dengan teknik TMA dapat digunakan untuk mengukur koefisien ekspansi termal suatu sampel. Teknik TMA ini dapat dilakukan menggunakan instrumen dilatometer. Dilatometer dapat merekam suhu dan perubahan dimensi linear suatu sampel. Hal inilah yang digunakan untuk mengukur koefisien ekspansi termal sampel tersebut (West, 2014).

Swierczek (2008) melakukan uji TMA terhadap perovskit LSCF 4628. Pada penelitiannya, Swierczek membuat serbuk perovskit LSCF 4628 menjadi pelet. Kemudian dilakukan uji TMA dengan dilatometer terhadap pelet tersebut. Pengujian dilakukan pada rentang suhu 50-900 °C dengan laju kenaikan suhu 5 °C/ menit. Hasil pengujian TMA ditunjukkan pada Gambar 2.14. Berdasarkan hasil tersebut diketahui bahwa LSCF 4628 dalam bentuk pelet memiliki koefisien ekspansi termal  $15,9 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{K}$  pada rentang suhu 100-500 °C dan  $32,8 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{K}$  pada rentang suhu 600-800°C.



Gambar 2. 14 Grafik Ekspansi termal LSCF 4628 (Swierczek, 2008)

## **BAB III**

### **METODOLOGI PENELITIAN**

Penelitian ini dilakukan dalam dua tahap, yakni sintesis oksida perovskit dengan metode reaksi solid state serta preparasi membran datar asimetris dengan metode inversi fasa dan sintering.

#### **3.1 Alat dan Bahan**

##### **3.1.1 Alat**

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi peralatan sintesis dan preparasi membran datar asimetris perovskit serta peralatan karakterisasi. Peralatan yang digunakan untuk sintesis dan preparasi membran datar asimetris perovskite adalah sebagai berikut : kaca arlogi, spatula, mortar, neraca analitik, erlenmeyer, magnetic stirrer, krusibel, oven, furnace, ayakan 400 mesh, plat kaca dan bak.

Alat yang digunakan untuk karakterisasi meliputi *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui bentuk kristalinilitas serbuk perovskit, Instrumen *Thermal Gravimetry Analysis-Differential Scanning Calorimetry* (TGA-DSC) untuk menentukan suhu sintering membran mentah, *Scanning Electron Microscope* (SEM) untuk mengetahui morfologi dari membran datar asimetris, Dillatometer untuk *Thermo Mechanical Analysis* (TMA), *Micro Vickers Hardness* untuk mengetahui kekuatan mekanik membran.

##### **3.1.2 Bahan**

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Co}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  sebagai bahan baku atau prekursor untuk sintesis oksida perovskit, DMSO (Dimetil Sulfoksida) sebagai pelarut polimer, PESf (Poliethersulfon) sebagai binder polimer, PEG (Poli etilen Glikol) 6000 dan 8000 sebagai aditif, serta Aqua DM sebagai non pelarut atau koagulan.

## 3.2 Prosedur Penelitian

### 3.2.1 Sintesis Oksida Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF 6428)

Sintesis oksida perovskit dilakukan dengan metode *solid state reaction*. Sebelum dimulai proses sintesis, prekursor yang digunakan berupa oksida-oksida dan karbonat-karbonat dikeringkan dalam oven pada suhu  $105^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam, lalu disimpan di dalam desikator selama 24 jam. Ditimbang oksida-oksida dan karbonat-karbonat prekursor dengan perbandingan mol  $\text{La}_2\text{O}_3 : \text{SrCO}_3 : \text{Co}_2\text{O}_3 : \text{Fe}_2\text{O}_3$  sama dengan  $3 : 4 : 0,67 : 4$ . Selanjutnya, prekursor dicampur dan dihaluskan dengan menggunakan alu dan mortar selama 2 jam. Kemudian, dilakukan proses kalsinasi pada suhu  $400^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam dengan laju pemanasan  $3^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  dan dilanjutkan pada suhu  $890^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam dengan laju pemanasan yang sama. Tahapan kalsinasi dilakukan sebanyak 2 kali dengan dilakukan penggerusan selama 15 menit setiap selesai proses kalsinasi. Serbuk yang dihasilkan selanjutnya dilakukan proses sintering pada  $1000^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam dengan laju pemanasan  $3^{\circ}\text{C}/\text{menit}$ . Oksida perovskit yang telah disinter dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X (XRD).

### 3.2.2 Preparasi Membran Datar Asimetris

Preparasi membran datar asimetris menggunakan metode inversi fasa dan sintering. Membran datar asimetris dibuat dengan komposisi oksida perovskit, DMSO, PESf dengan perbandingan massa  $55,2 : 42,6 : 5,2$ . Pada penelitian ini dilakukan variasi penambahan adiktif PEG 6000 dan PEG 8000 dengan konsentrasi masing-masing  $0\%$ ;  $0,23\%$ ;  $0,39\%$  dan  $0,55\%$  larutan polimer. Variasi penambahan aditif ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh aditif terhadap pembentukan morfologi membran perovskit.

Pembuatan membran diawali dengan mencampurkan DMSO, PESf dan aditif PEG menggunakan *magnetic stirrer* sampai larut sempurna. Setelah itu, larutan polimer ditambah serbuk oksida perovskit yang telah lolos ayakan 400 mesh, lalu diaduk selama

48 jam. Selanjutnya, larutan campuran bahan-bahan tersebut dicetak dalam cetakan, kemudian dimasukkan ke dalam larutan koagulan (Aqua DM) selama 24 jam. Lalu, diangkat dan dikeringkan pada suhu ruang. Selanjutnya, dilakukan dekomposisi dan sintering terhadap membran mentah. Proses dekomposisi dilakukan bertahap sesuai metode yang dihasilkan dari analisis TGA-DSC. Untuk proses sintering dilakukan pada suhu 1250°C selama 4 jam.

### **3.2.3 Karakterisasi dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM)**

Membran mentah yang telah padat dan kering dipotong kecil-kecil untuk dikarakterisasi morfologinya dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM). Permukaan atas, permukaan bawah dan penampang melintang adalah bagian-bagian yang diamati. Pengamatan morfologi membran dilakukan dua kali, yakni sebelum sintering (membran mentah) dan membran setelah sintering.

### **3.2.4 Analisis Thermal Gravimetri Analisis-Differential Scanning Calorimetri (TGA-DSC)**

Membran mentah dikarakterisasi dengan TGA-DSC untuk menentukan suhu sintering yang cocok agar didapatkan membran yang rapat. Analisis dilakukan pada rentang suhu kamar sampai dengan 1000°C dengan laju kenaikan 10°C /menit.

### **3.2.5 Analisis Thermo Mechanical Analysis (TMA)**

Membran yang telah melalui proses sintering dianalisis TMA. Analisis ini dilakukan untuk mengetahui koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 yang dihasilkan. Analisis TMA dilakukan pada rentang suhu 25-1000°C dengan laju kenaikan suhu 10°C/menit dan diberi beban 0,02 N.



### **3.2.6 Uji Kekuatan Mekanik (kekerasan) Membran Asimteris Perovskit LSCF 6428**

Membran asimteris LSCF 6428 yang telah disinter diuji kekuatan mekaniknya. Kekuatan mekanik yang diuji pada penelitian ini adalah kekerasan. Uji kekerasan menggunakan metode *Micro Vickers Hardness*. Indentor yang digunakan berupa intan berbentuk piramid. Gaya yang diberikan saat indentasi adalah 0,5 Kgf dan ditahan selama 10 detik pada 5 titik.

## **BAB IV**

### **HASIL DAN PEMBAHASAN**

#### **4. 1 Sintesis Oksida Perovskit LSCF 6428**

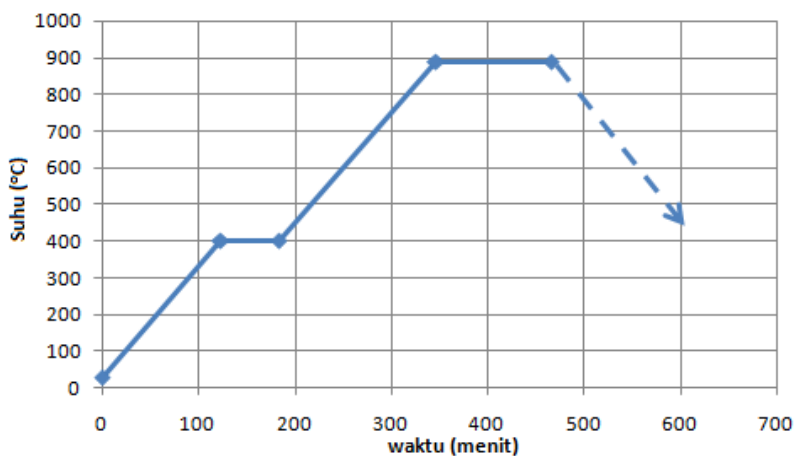
Sintesis oksida perovskit LSCF 6428 dilakukan dengan metode *solid state*. Metode ini dipilih karena relatif mudah dilakukan dan menghasilkan *yield* yang mendekati jumlah yang diinginkan. Reaksi yang terjadi pada metode ini adalah padat-padat antar serbuk prekursor yang digunakan. Prekursor yang digunakan untuk sintesis perovskit LSCF 6428 adalah serbuk  $\text{La}_2\text{O}_3$  dan  $\text{SrCO}_3$  yang berwarna putih,  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang berwarna hitam, dan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang berwarna merah.

Sebelum digunakan, semua oksida dan karbonat logam prekursor dipanaskan dalam oven pada suhu  $105^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Hal ini dilakukan untuk menghilangkan kadar uap air dalam prekursor-prekursor tersebut, sehingga massa prekursor tidak terpengaruh uap air saat penimbangan. Setelah itu, serbuk-serbuk prekursor tersebut dimasukkan ke dalam desikator selama 24 jam agar mendingin sampai suhu kamar dan tidak kembali menyerap uap air.

Prekursor-prekursor yang telah melalui proses pemanasan dan pengeringan ditimbang sesuai dengan stokhiometri yang telah dijelaskan pada sub Bab 3.1. Prekursor yang telah ditimbang dicampur lalu digerus menggunakan alu dan mortar selama 2 jam. Penggerusan dilakukan untuk mencampur serbuk-serbuk prekursor sekaligus memperkecil ukuran partikelnya agar reaksi dapat berlangsung lebih cepat.

Setelah digerus selama 2 jam, dilakukan proses kalsinasi tahap pertama dengan skema yang ditunjukkan pada Gambar 4.1. Kalsinasi tahap pertama dilakukan pada suhu  $400^\circ\text{C}$  selama 1 jam dan dilanjutkan dengan kalsinasi pada suhu  $890^\circ\text{C}$  selama 2 jam dengan laju kenaikan suhunya sebesar  $3^\circ\text{C}/\text{menit}$ . Proses ini dilakukan untuk menghilangkan zat-zat dalam prekursor yang tidak dibutuhkan dalam struktur perovskit, seperti karbonat yang terdekomposisi pada suhu  $400\text{-}800^\circ\text{C}$  (Akbari dkk., 2015). Selain

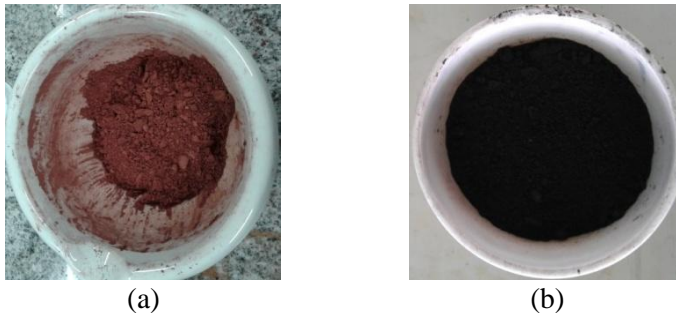
itu, proses kalsinasi ini juga bertujuan membentuk struktur perovskit LSCF 6428 yang diinginkan. Penentuan suhu kalsinasi ini berdasarkan hasil analisis TGA-DTA yang dilaporkan oleh Maulidah (2011) yang menyatakan bahwa pembentukan oksida perovskit berbasis kobalt dengan metode *solid state* mulai terjadi pada suhu 880°C. Laju kenaikan suhu sebesar 3°C/menit dilakukan untuk menghindari terjadinya letupan pada serbuk prekursor yang disebabkan karena pembentukan gas yang terlalu cepat, sehingga komposisi prekursor bisa dipertahankan. Setelah proses kalsinasi pada suhu 890°C selesai, campuran didinginkan lalu digerus menggunakan alu dan mortar selama 15 menit. Hal ini dilakukan untuk memperkecil ukuran partikel dan meningkatkan kontak antar partikel, khususnya partikel-partikel prekursor yang belum bereaksi. Selanjutnya dilakukan proses kalsinasi kembali dengan suhu dan laju kenaikan suhu yang sama.



Gambar 4. 1 Skema kalsinasi tahap pertama

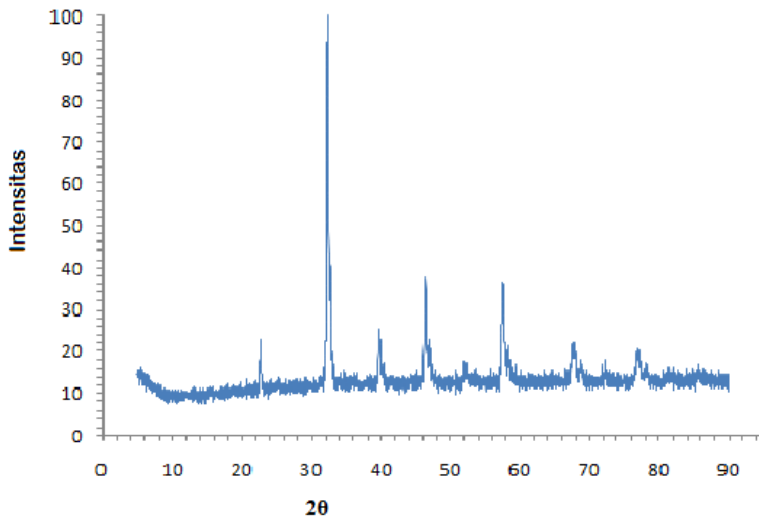
Hasil proses kalsinasi tahap pertama kembali dihaluskan dengan mortar dan alu selama 15 menit. Selanjutnya dilakukan kalsinasi tahap kedua dengan suhu 1000 °C selama 2 jam. Proses kalsinasi kedua ini juga dilakukan 2 kali dengan penggerusan

selama 15 menit diantara keduanya. Tujuan kalsinasi tahap kedua ini adalah untuk mengoptimalkan laju reaksi pembentukan perovskit dan meningkatkan kristalinitas perovskit yang dihasilkan. Campuran serbuk prekursor yang semula berwarna merah bata, berubah warna menjadi hitam setelah dilakukan kalsinasi (Gambar 4.2). Perubahan warna yang terjadi mengindikasikan terjadinya reaksi antar prekursor saat proses kalsinasi. Reaksi yang terjadi tersebut diduga adalah reaksi pembentukan oksida perovskit dari prekursor-prekursor yang digunakan. Untuk menentukan fasa kristal yang terbentuk, maka dilakukan karakterisasi menggunakan difraksi sinar-X (*XRD*), yang hasilnya ditampilkan pada Gambar 4.3.



Gambar 4. 2 (a) Campuran prekursor Perovskit sebelum dikalsinasi dan (b) Campuran prekursor perovskit setelah dikalsinasi

Gambar 4.3 merupakan difraktogram sinar-X dari perovskit LSCF 6428 hasil sintesis. Difaktogram tersebut menunjukkan puncak-puncak  $2\theta$  pada  $32,3^\circ$ ;  $39,9^\circ$ ;  $47,0^\circ$ ;  $57,5^\circ$ ;  $68,0^\circ$  dan  $77,0^\circ$ . Hal ini sesuai dengan standar difraktogram dari JCPDS no. 01-082-1961. Hasil tersebut juga sama dengan hasil sintesis perovskit LSCF 6428 yang dilaporkan oleh Santos dkk (2011). Dari hasil tersebut dapat disimpulkan bahwa sintesis yang dilakukan telah berhasil membentuk serbuk perovskit LSCF 6428.



Gambar 4. 3 Difraktogram oksida perovskit LSCF 6428

#### 4. 2 Preparasi Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428

Membran perovskit asimetris dibuat dengan metode inversi fasa. Teknik ini dipilih karena telah terbukti dapat menghasilkan membran asimetris seperti yang dilaporkan oleh Tan dkk. (2011). Membran asimetris yang dimaksud disini adalah membran yang memiliki lapisan rapat yang tipis dan lapisan berpori yang berbentuk menjari atau *fingerlike*. Selain itu, metode ini juga dianggap fleksibel serta mudah diaplikasikan pada material anorganik (Strathman, 1975).

Dalam pembuatan membran asimetris perovskit LSCF 6428, digunakan serbuk perovskit yang lolos ayakan 400 mesh. Hal ini dilakukan agar ukuran serbuk perovskit yang digunakan seragam dan cukup kecil agar didapatkan membran mentah (membran sebelum disinter) dengan kerapatan yang tinggi. Ukuran partikel serbuk perovskit mempengaruhi kerapatan membran asimetris yang dihasilkan. Jika ukuran partikel serbuk perovskit semakin kecil maka tingkat kerapatan membran semakin meningkat

(Husnah, 2014). Pada penelitian ini dilakukan penambahan aditif berupa PEG 8000 dan PEG 6000 yang masing-masing divariasi konsentrasinya. Variasi konsentrasi yang digunakan adalah 0%; 0,23%; 0,39% dan 0,55%. Hal ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh penambahan aditif terhadap morfologi membran yang dihasilkan.

Preparasi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428 diawali dengan melarutkan Polietersulfon (PESf) dan aditif Poli etilen glikol (PEG) ke dalam Dimetil sulfoksida (DMSO). Pelarutan dilakukan dengan mengaduk bahan-bahan tersebut menggunakan *magnetic stirrer* dalam erlenmeyer berpenutup. Hal ini dilakukan untuk menghindari masuknya uap air dari udara yang lembab, yang dapat bereaksi dengan campuran reaktan sehingga bisa mengganggu proses pelarutan polimer. Setelah semua reaktan menjadi larutan yang homogen, ditambahkan serbuk oksida perovskit LSCF 6428 yang lolos ayakan 400 mesh, lalu dilanjutkan pengadukan selama 48 jam. Perlakuan ini berfungsi agar serbuk oksida perovskit LSCF 6428 tercampur merata dan membentuk larutan polimer oksida perovskit yang homogen.

Campuran larutan polimer dan serbuk oksida perovskit LSCF 6428 yang telah homogen dituang ke permukaan cetakan berupa pelat gelas yang pinggirannya ditemplei selotif dengan ketebalan  $\pm 2$  mm. Campuran di permukaan cetakan tersebut selanjutnya diratakan dengan batang pengaduk berbahan gelas sehingga menjadi datar dan rata. Setelah rata, dilakukan proses perendaman di dalam aqua DM selama 24 jam. Pada proses perendaman ini terjadi perubahan fasa larutan campuran polimer dan serbuk oksida perovskit dari cair ke padat. Hal ini terjadi karena adanya pertukaran antara pelarut polimer (DMSO) dan non-pelarut (Aqua DM). Pelarut (DMSO) berdifusi keluar dari larutan polimer dan Aqua DM sebagai non-pelarut sekaligus koagulan masuk ke dalam larutan polimer. Proses inilah yang menyebabkan koagulasi dan pembentukan pori pada membran. Saat pelarut keluar, konsentrasi polimer meningkat dan proses

selanjutnya menyebabkan pemadatan membran polimer oksida perovskit LSCF 6428. Perendaman dilakukan selama 24 jam agar proses difusi pertukaran pelarut dan non-pelarut serta proses pemadatan membran berlangsung secara sempurna. Setelah 24 jam, membran dikeluarkan dari aqua DM dan dikeringkan pada suhu ruang. Membran mentah yang terbentuk ditunjukkan pada Gambar 4.4.



Gambar 4. 4 Membran Mentah Oksida Perovskit LSCF 6428

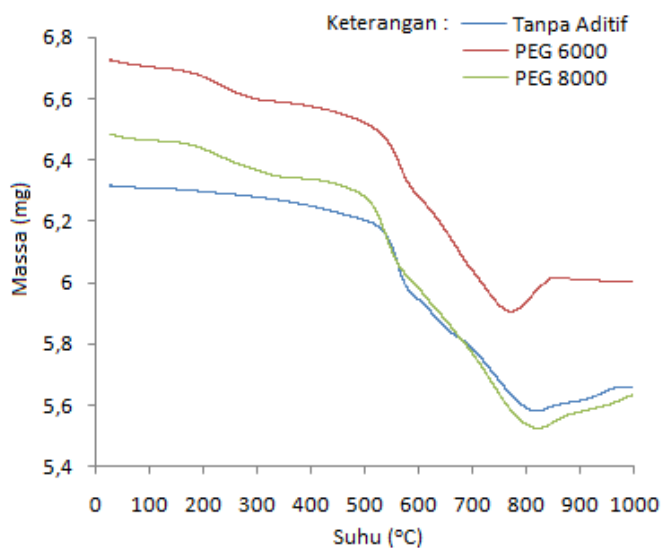
Membran mentah yang telah terbentuk dikarakterisasi dengan TGA-DSC. Analisa ini dilakukan dari suhu kamar sampai 1000 °C dengan laju kenaikan suhu 10°C/menit. Analisa ini dilakukan untuk mengetahui reaksi yang terjadi pada membran mentah saat nanti dilakukan proses sintering. Selain itu, analisa ini juga dapat digunakan untuk menentukan skema sintering membran mentah. Hasil TGA-DSC ditunjukkan oleh Gambar 4.5 di bawah.

Berdasarkan termogram yang dihasilkan dan ditunjukkan pada Gambar 4.5 terlihat adanya lembah endotermis pada rentang suhu 250-450 °C. Pada rentang suhu ini diperkirakan terjadi dekomposisi pelarut yang tersisa dan aditif PEG (Sari dkk., 2017). Hal ini diperkuat dengan tidak ditemukannya lembah tersebut untuk termogram membran tanpa aditif. Pada suhu sekitar 500-550°C juga terdapat lembah endotermis. Lembah ini

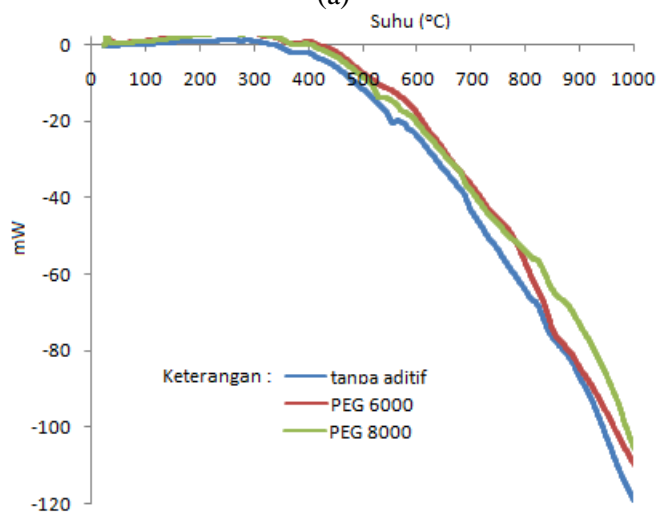
diperkirakan merupakan reaksi dekomposisi PESf (Abate dkk., 2006). Selanjutnya, pada suhu sekitar 800-880 °C terdapat lembah eksotermis yang diperkirakan merupakan reaksi reoksidasi sebagian oksida perovskit LSCF (Maulidah, 2011) yang tereduksi ketika terjadi dekomposisi PEG maupun PESf menjadi CO<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O. Berdasarkan hasil analisa TGA-DSC maka sintering membran mentah oksida perovskit perlu dilakukan secara bertahap agar reaksi-reaksi yang terjadi selama proses seperti dekomposisi PEG dan PESf dapat berlangsung tanpa merusak bentuk membran.

Berdasarkan termogram TGA-DSC membran mentah yang ditunjukkan pada Gambar 4.5 maka dapat ditentukan skema proses sintering membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428 mentah. Proses sintering dilakukan dalam 2 tahap, yakni tahap dekomposisi polimer dan tahap densifikasi. Proses dekomposisi polimer dilakukan pemanasan menggunakan furnace dari suhu ruang sampai suhu 550 °C dan ditahan selama 1 jam, lalu dilanjutkan sampai suhu 700 °C dan ditahan lagi selama 1 jam. Laju kenaikan suhu pada tahap ini diatur 3 °C/menit. Tahap selanjutnya adalah tahap densifikasi. Proses ini bertujuan untuk membuat membran menjadi rapat. Tahap densifikasi dilakukan dengan sintering menggunakan furnace dengan laju kenaikan suhu 7 °C/menit dari suhu ruang sampai suhu 1250 °C dan ditahan selama 4 jam





(a)

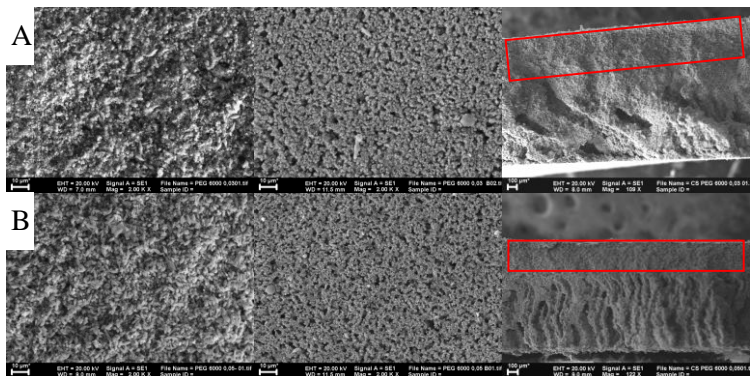


(b)

Gambar 4. 5 Termogram (a) TGA dan (b) DSC membran mentah oksida perovskit LSCF 6428

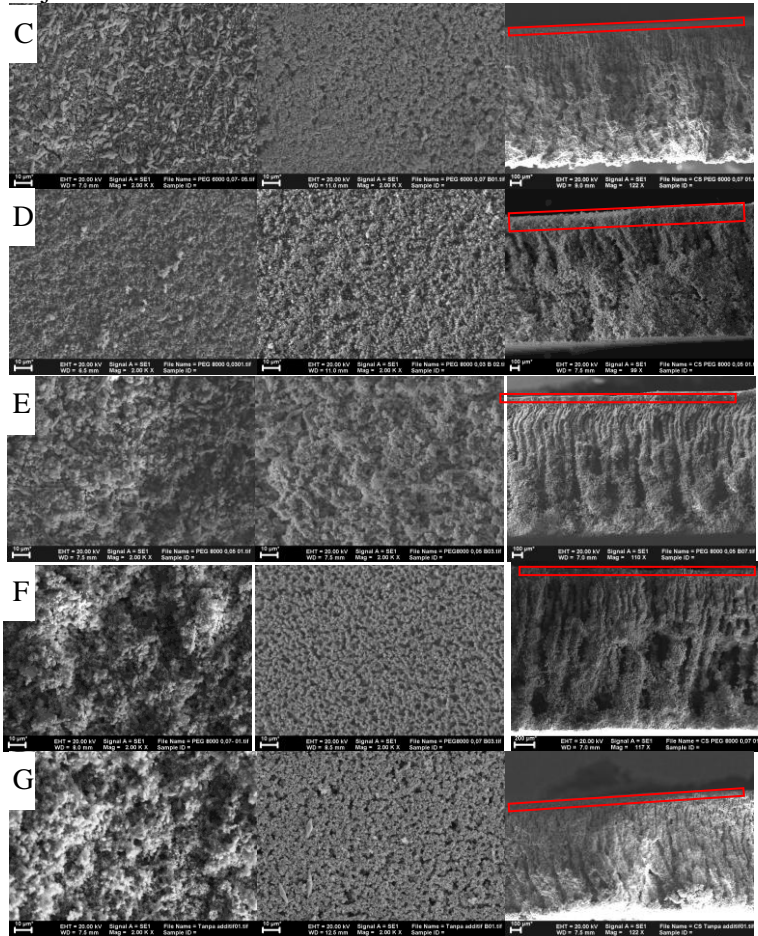
### 4.3 Morfologi Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428 Pra-Sintering

Penambahan aditif ke dalam larutan polimer/ *casting* dalam preparasi membran asimetris memiliki 2 pengaruh yang saling berkompetitif. Aditif dapat meningkatkan ketidakstabilan termodinamika larutan polimer saat bereaksi dengan Aqua DM. Hal ini membuat proses *demixing* berlangsung cepat, sehingga membentuk pori yang lebih besar (efek termodinamika). Namun, aditif berinteraksi kuat dengan pelarut dan polimer yang menyebabkan viskositas larutan polimer meningkat secara signifikan. Viskositas larutan polimer yang semakin besar dapat memperlambat pemadatan saat proses inversi fasa (efek kinetika) dan menghambat efek termodinamika (Lalia, dkk., 2013). Oleh karena itu morfologi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428 diamati dengan SEM. Pengamatan ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh penambahan aditif PEG terhadap pembentukan morfologi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428. Hasil pengamatan membran mentah ditunjukkan pada Gambar 4.6.



\*dilanjutkan ke halaman 44

\*lanjutan dari halaman 43



Keterangan : Lapisan rapat

Gambar 4. 6 Foto SEM morfologi membran mentah asimetris LSCF 6428 (kiri : permukaan berpori, tengah : permukaan rapat, kanan : penampang melintang). A-G (PEG 6000 0,23;0,39;0,55 %, PEG 8000 0,23;0,39;0,55 %, tanpa aditif)

Gambar 4.6 pada bagian permukaan membran terlihat masih adanya polimer yang merekatkan antar serbuk perovskit yang ditunjukkan dengan lapisan transparan tipis diantara serbuk perovskit yang tidak menyatu. Pada Gambar 4.6 juga tampak semua variasi membentuk membran asimetris, yakni memiliki lapisan rapat dan lapisan berpori berbentuk menjari (*fingerlike*). Hal ini sesuai dengan apa yang dilaporkan oleh Yuan, dkk. (2011). Secara umum, pembentukan pori disebabkan oleh terjadinya kontak antara larutan polimer/*casting* yang memiliki viskositas lebih besar dengan non-pelarut atau koagulan (Othman, dkk., 2013). Saat campuran larutan polimer/*casting* dan koagulan (aqua DM) bersentuhan, terjadi difusi perpindahan pelarut polimer dalam larutan *casting* menuju bak koagulasi dan non-pelarut atau koagulan yang masuk ke campuran larutan *casting*. Laju pergantian non-pelarut atau koagulan yang masuk lebih cepat dari pada laju difusi pelarut yang keluar dari campuran polimer menyebabkan pori berbentuk menyerupai menjari atau *fingerlike* (Tan, dkk., 2011).

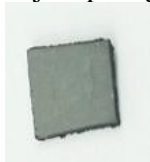
Berdasarkan Gambar 4.6 bagian penampang melintang membran, diketahui bahwa penambahan aditif berpengaruh terhadap pembentukan morfologi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428. Membran dengan penambahan aditif PEG memiliki morfologi pori yang lebih teratur dan seragam dibandingkan dengan membran tanpa penambahan aditif PEG. Morfologi membran dengan penambahan PEG 6000 berbeda dengan membran yang ditambahkan PEG 8000. Hal ini disebabkan karena setiap komponen aditif memiliki pengaruh terhadap termodinamika maupun kinetika sistemnya masing-masing (Mulder, 1996). PEG 6000 lebih mudah larut di dalam larutan polimer, sehingga dapat membentuk morfologi membran lebih teratur dibandingkan dengan PEG 8000.

Konsentrasi penambahan aditif PEG ke dalam larutan *casting* juga berpengaruh terhadap morfologi membran. Semakin besar konsentrasi PEG yang ditambahkan (pada jenis aditif PEG yang sama ) ke dalam larutan *casting* membentuk membran

asimetris dengan lapisan rapat yang semakin tipis dan ukuran diameter pori yang semakin kecil dan banyak. Hal ini disebabkan karena konsentrasi aditif PEG yang semakin besar menyebabkan pelarut yang digunakan untuk melarutkan PEG juga semakin banyak sehingga konsentrasi polimer dan viskositas larutan meningkat. Larutan polimer menjadi tidak stabil secara termodinamika yang menyebabkan terjadinya *demixing* secara cepat saat pencelupan ke dalam bak koagulan ( Ma, dkk., 2011). Namun, disisi lain viskositas yang besar membuat laju pemadatan larutan polimer menurun sehingga terdapat cukup waktu untuk terjadinya penataan ulang larutan *casting* membentuk pori-pori sebelum membran memadat (Lalia, dkk., 2013)..

#### **4. 4 Morfologi Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428 (Pasca-Sintering)**

Membran mentah yang telah terbentuk selanjutnya dilakukan proses sintering. Proses sintering dilakukan dalam 2 yakni tahap dekomposisi polimer dan tahap pemadatan sesuai dengan yang telah dijelaskan pada sub bab 4.1. Membran yang telah melalui proses sintering ditunjukkan oleh Gambar 4.7. Membran mengalami penyusutan ukuran selama proses sintering. Besarnya penyusutan ukuran membran antara sebelum dan sesudah sintering ditunjukkan pada Tabel 4.1. Hal ini terjadi karena hilangnya polimer perekat selama proses sintering. Selain itu jarak antar serbuk perovskit menjadi lebih kecil bahkan hilang sehingga membran setelah sintering tampak lebih rapat dan keras (Mulder, 1996). Penyusutan yang dialami membran menyebabkan permukaan membran menjadi sedikit melengkung. Membran tanpa penambahan aditif mengalami penyusutan paling besar dan membuat permukaannya menjadi peling melengkung.

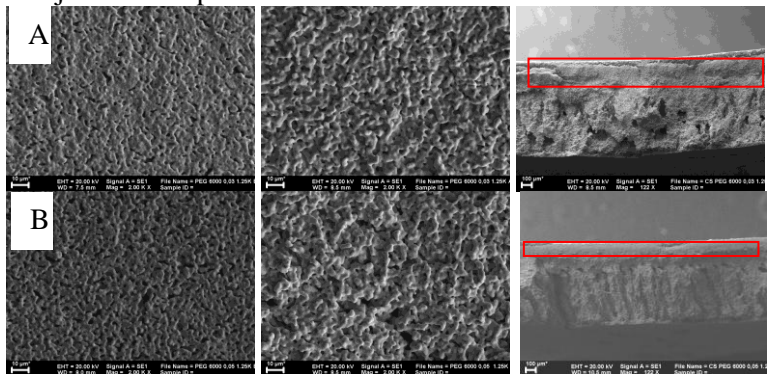


Gambar 4. 7 Membran setelah sintering

**Tabel 4. 1 Penyusutan ukuran membran setelah sintering**

Variasi Membran	ketebalan sebelum sintering	ketebalan setelah sintering	% penyusutan
Tanpa aditif	0,170	0,075	55,882
PEG 6000 0,23 %	0,160	0,100	37,500
PEG 6000 0,39 %	0,140	0,080	42,857
PEG 6000 0,55 %	0,170	0,090	47,059
PEG 8000 0,23 %	0,130	0,080	38,462
PEG 8000 0,39 %	0,160	0,110	31,250
PEG 8000 0,55 %	0,140	0,100	28,571

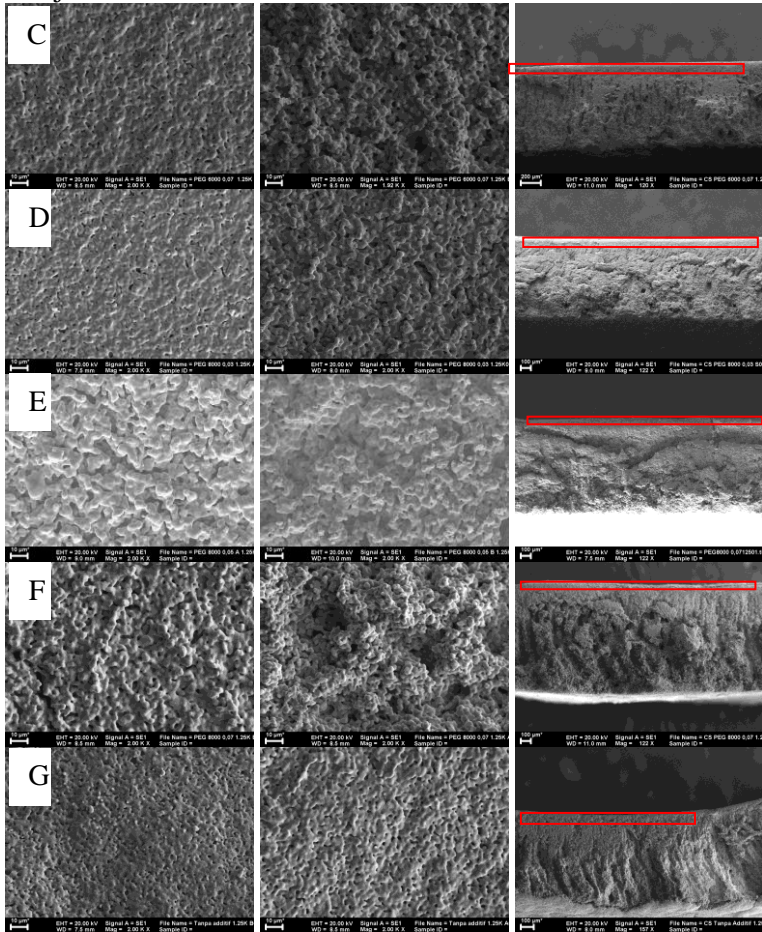
Membran yang telah melalui proses sintering juga diamati morfologinya menggunakan SEM. Hasil pengamatan menggunakan SEM ditunjukkan oleh Gambar 4.8. Berdasarkan foto SEM pada Gambar 4.8 terlihat bahwa morfologi membran tidak jauh berubah dibandingkan dengan sebelum sintering, namun ukuran porinya menjadi lebih kecil dan permukaannya menjadi lebih rapat.



\*dilanjutkan ke halaman 48



\*lanjutan dari halaman 47



Keterangan : Lapisan rapat

Gambar 4. 8 Foto SEM morfologi membran asimetris LSCF 6428 setelah sintering (kiri : permukaan rapat, tengah : permukaan berpori, kanan : penampang melintang). A-G (PEG 6000 0,23;0,39;0,55 %, PEG 8000 0,23;0,39;0,55 %, tanpa aditif)

Membran setelah proses sintering masih mempertahankan struktur asimetris. Terlihat bahwa membran tanpa aditif dan membran dengan penambahan aditif 6000 masih memiliki kecenderungan struktur morfologi yang sama seperti sebelum sintering. Namun, untuk membran dengan penambahan PEG 8000 pada konsentrasi kecil mengalami penyusutan pori bahkan hilang sehingga terlihat hampir seperti membran rapat. Membran yang ditambahkan PEG 8000 dengan konsentrasi 0,55 % masih menunjukkan struktur asimetris.

Selanjutnya dilakukan pengukuran volume pori membran asimetris. Tabel 4.2 menunjukkan volume pori membran asimetris tiap variasi aditif PEG yang ditambahkan. Volume pori ditentukan dari perubahan massa membran sebelum dan sesudah membran dimasukkan dalam air mendidih pada rentang waktu yang sama. Jumlah air yang terserap ke dalam membran dianggap sebagai volume pori membran asimetris. Membran yang tanpa penambahan aditif PEG memiliki volume pori yang lebih kecil dibandingkan dengan membran yang ditambahkan dengan PEG. Untuk membran dengan penambahan PEG 6000 memiliki volume pori yang lebih besar dibandingkan dengan membran dengan penambahan PEG 8000. Hal itu sesuai dengan foto SEM pada Gambar 4.8 yang menunjukkan bahwa membran dengan penambahan aditif PEG 6000 memiliki morfologi pori yang lebih teratur. Membran dengan konsentrasi PEG 6000 0,39 % memiliki volume pori yang terbesar. Hal ini juga sesuai dengan foto SEM pada Gambar 4.8.

Tabel 4. 2 Pengukuran volume pori membran asimetris

Variasi	Volume pori (mL/g)
Tanpa Aditif	0,07
PEG 6000 0,23%	0,10
PEG 6000 0,39%	0,12
PEG 6000 0,55%	0,09
PEG 8000 0,23%	0,07
PEG 8000 0,39%	0,06
PEG 8000 0,55%	0,07



#### 4.5 Uji Kekerasan Membran

Membran yang telah melalui proses sintering diuji kekerasannya menggunakan *micro vickres hardness*. Uji ini dilakukan untuk mengetahui kekuatan mekanik membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428. Uji kekerasan yang dilakukan menggunakan parameter yang di telah dijelaskan di sub Bab 3.2.5. Hasil uji ditunjukkan Tabel 4.3.

Berdasarkan Tabel 4.3 diketahui bahwa membran tanpa penambahan aditif PEG memiliki nilai kekerasan bervariasi antara 278,9-488,9 Hv. Membran yang ditambahkan PEG 6000 dengan konsentrasi 0,23 %, 0,39 % dan 0,55 % memiliki nilai kekerasan yang bervariasi masing-masing 412,1-673,3 Hv, 121,3-310,0 Hv dan 348,9-562,6 Hv. Sedangkan membran dengan penambahan PEG 8000 memiliki rata-rata nilai kekerasan yang lebih tinggi yakni 292,7-622,2 Hv untuk konsentrasi 0,23 %, 412,5-591,9 Hv untuk konsentrasi 0,39 % dan 297,6-598 Hv untuk konsentrasi 0,55 %. Berdasarkan uji ANOVA terhadap hasil uji nilai kekerasan membran asimetris perovskit LSCF 6428 (terlampir pada Lampiran B.6) diketahui bahwa variasi penambahan aditif PEG menghasilkan perbedaan nilai kekerasan membran yang signifikan.

Berdasarkan hasil uji kekerasan diketahui bahwa kekerasan membran berbanding terbalik dengan volume pori membran. Membran dengan volume pori yang besar memiliki nilai kekerasan yang kecil. Diketahui bahwa membran dengan penambahan aditif PEG 6000 0,39 % memiliki volume yang paling besar, namun memiliki nilai kekerasan yang paling kecil. Hal ini disebabkan karena membran dengan volume pori yang besar memiliki kekosongan yang besar di dalamnya sehingga mengurangi kekuatan mekanik (kekerasan) membran asimetris. (Tan dkk., 2011).

Tabel 4. 3 Nilai Kekerasan Membran

Variasi	Kekerasan tiap titik (Hv)	rata-rata Kekerasan (Hv)
Tanpa Aditif	386,20	412,36
	488,90	
	456,40	
	451,40	
	278,90	
PEG 6000 0,23%	420,50	506,60
	673,30	
	517,30	
	509,80	
	412,10	
PEG 6000 0,39%	310,00	200,08
	169,60	
	166,20	
	121,30	
	233,30	
PEG 6000 0,55%	373,40	409,90
	377,10	
	348,90	
	387,50	
	562,60	
PEG 8000 0,23%	406,30	460,52
	463,80	
	292,70	
	622,20	
	517,60	
PEG 8000 0,39%	513,40	507,62
	412,50	
	591,90	
	489,10	
	531,20	
PEG 8000 0,55%	297,60	494,66
	478,20	
	507,00	
	598,00	
	592,50	

#### **4.6 Koefisien Ekspansi Termal Membran Asimetris Oksida Perovskit LSCF 6428**

Membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428 yang telah melalui proses sintering diuji TMA (*Thermo Mechanical Analysis*) untuk mengetahui koefisien ekspansi termal membran. Pengujian TMA menggunakan dilatometer dengan metode yang telah dijelaskan pada sub bab 3.2.6. Hasil TMA ditunjukkan pada Gambar 4.9 dan 4.10.

Besarnya nilai koefisien ekspansi termal membran dipengaruhi oleh faktor kimia dan faktor fisik. Faktor kimia tidak berpengaruh terhadap nilai koefisien ekspansi termal membran pada kasus ini karena semua membran dibuat dari material yang sama (oksida perovskit LSCF 6428), sehingga nilai koefisien ekspansi termal hanya dipengaruhi dari morfologi membran. Berdasarkan Gambar 4.9, Gambar 4.10 dan 4.11 diketahui bahwa membran dengan penambahan aditif PEG 8000 dan membran tanpa penambahan aditif memiliki koefisien ekspansi termal yang lebih linear dari pada membran dengan penambahan PEG 6000. Nilai koefisien ekspansi termal ditunjukkan pada Tabel 4.4 - 4.6. Besarnya nilai koefisien ekspansi termal membran dengan penambahan PEG 8000 berbanding terbalik dengan konsentrasi PEG yang ditambahkan. Hal ini disebabkan oleh morfologi membran asimetris (Machfudzoh, 2014). Berdasarkan foto SEM pada Gambar 4.8 membran yang ditambahkan PEG dengan konsentrasi yang lebih besar memiliki morfologi bentuk pori yang lebih kecil.

Tabel 4. 4 Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 dengan penambahan aditif PEG 8000

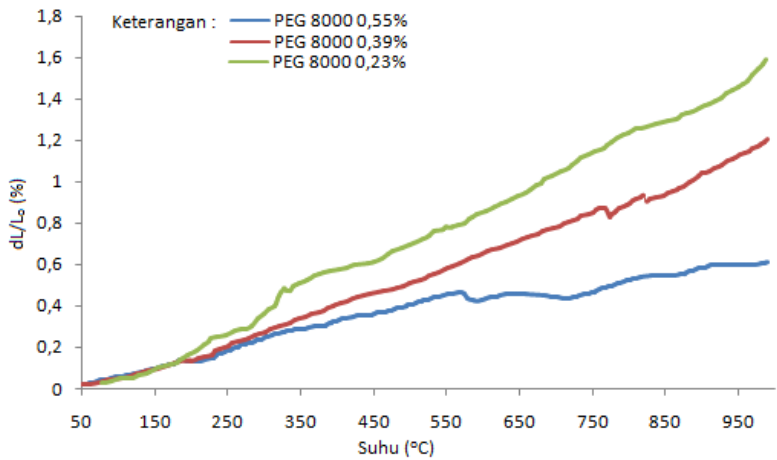
PEG 8000 0,23 %		PEG 8000 0,39%		PEG 8000 0,55%	
Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )
50-155	12,67	50-227	8,39	50-210	8,01
155-390	20,43	227-444	13,26	210-326	12,71
390-497	16,19	444-767	13,45	326-709	5,35
497-852	18,25	767-819	17,87	709-814	10,80
852-990	25,44	819-990	17,86	814-990	4,29

Tabel 4. 5 Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 dengan penambahan aditif PEG 6000

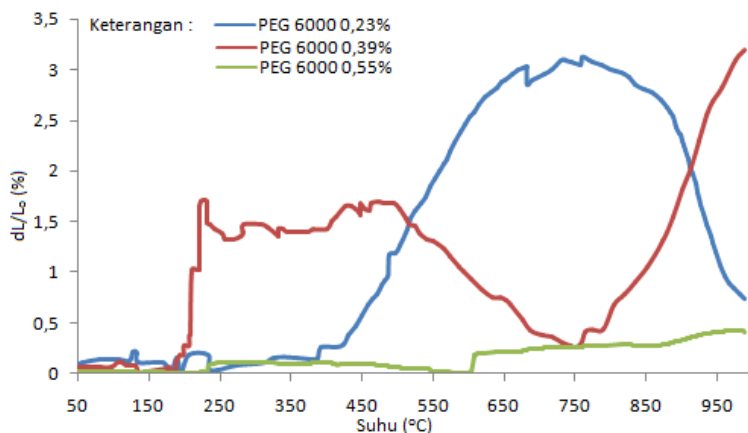
PEG 6000 0,23 %		PEG 6000 0,39%		PEG 6000 0,55%	
Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )
85-225	-0,64	85-188	-0,60	85-213	-0,60
225-402	1,11	188-346	7,53	213-399	2,97
402-711	11,17	346-471	2,84	399-609	-5,16
711-770	1,97	471-749	-566,56	609-828	4,79
770-875	-3,95	749-861	7,91	828-990	11,80
879-990	-19,26	861-990	17,72		

Tabel 4. 6 Nilai koefisien ekspansi termal membran asimetris perovskit LSCF 6428 tanpa penambahan aditif

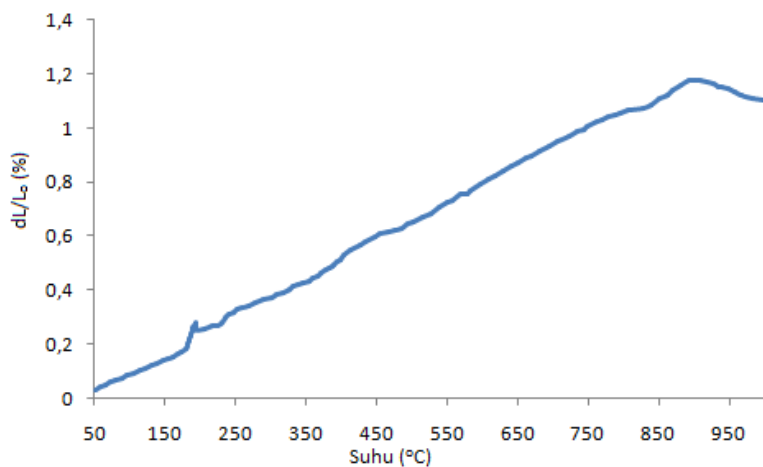
Rentang suhu (°C)	Koefisien ekspansi termal (10 <sup>-6</sup> /°C)
50-193	15,02
193-397	12,14
397-786	13,82
786-907	11,53
907-990	-9,56



Gambar 4. 9 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 8000



Gambar 4. 10 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 6000



Gambar 4. 11 Hasil TMA membran tanpa penambahan aditif

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## **BAB V**

### **KESIMPULAN DAN SARAN**

#### **5.1 Kesimpulan**

Berdasarkan hasil dari penelitian ini, dapat disimpulkan bahwa penambahan aditif PEG berpengaruh terhadap pembentukan morfologi membran asimetris oksida perovskit LSCF 6428. Membran dengan penambahan aditif PEG 6000 memiliki morfologi pori yang lebih seragam dan teratur dibandingkan membran dengan penambahan aditif 8000 serta tanpa aditif. Pada jenis aditif yang sama, membran dengan penambahan konsentrasi aditif PEG yang lebih tinggi memiliki lapisan rapat yang semakin tipis dan lapisan berpori dengan morfologi yang lebih seragam. Membran dengan penambahan aditif PEG 8000 memiliki nilai kekuatan mekanik (kekerasan) yang lebih besar dibandingkan membran dengan penambahan aditif PEG 6000 pada konsentrasi yang sama karena memiliki volume pori yang lebih kecil.

#### **5.2 Saran**

Pada penelitiannya selanjutnya diharapkan dapat menentukan pengaruh penambahan aditif PEG dengan berat molekul yang lain, diutamakan lebih rendah dari PEG 6000, dan rentang konsentrasi yang semakin banyak terhadap pembentukan morfologi dan kekuatan mekanik membran asimetris oksida perovskit. Selain itu, juga dapat dilakukan uji fluks permeasi oksigen terhadap membran oksida perovskit yang dihasilkan.



***“ Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## DAFTAR PUSTAKA

- Abate, L.; Blanco, I.; Cicala, G.; Spina, R.L.; Restuccia, C.L. (2006) Thermal and Rheological Behavior of Some Random Aromatic Polyether sulfone / Poly etherether sulfone Copolymers, *Polymer Degradation and Stability*, Vol 91, Hal 924-930.
- Akbari-Fakhrabadi, A.; Satishkumar, P.; Ramam, K.; Palma, R.; Mangalaraja, R.V. (2015) Low Frequency Ultrasound Assisted Synthesis of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) Perovskite Nanostructure, *Powder Technology*, vol 276, Hal 200-203.
- Akbari-Fakhrabadi, A.; Meruane, V.; Jamshidijam, M.; Gracia-Pinilla, M.A.; Garcia, R.; Orella, M. (2016) Structural and Mechanical Properties of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{M}_{0.1}\text{Fe}_{0.9}\text{O}_{3-\delta}$  (M: Co, Ni and Cu) Perovskites, *Ceramics International*.
- Athayde, D.D.; Souza, D.F.; Silva, A.M.A.; Vasconcelos, D.; Nunes, E.H.M.; da Costa, Joao C.D.; Vasconcelos, W.L. (2016) Review of Perovskite Ceramic Synthesis and Membrane Preparation Methods, *Ceramics International*, Vol 42, Hal 6555-6571.
- Atkins, P.W.; Overton, T.L.; Rourke, J.P.; Weller, M.T.; Armstrong, F.A. (2010) *Inorganic Chemistry Fifth Edition*, W.H. Freeman and Company, New York
- Bakeri, Gh.; Ismail, A.F.; Niassar, M.S.; Matsuura, T. (2010) Effect of Polymer Concentration on the Structure and Performance of Polyetherimide Hollow Fiber Membranes, *Journal of Membrane Science*, Vol 363, Hal 103-111.
- Burgraaf, A. and Cot, L. (1996) *Fundamentals of Inorganic Membrane Science and Technology*, Elsevier, Amsterdam.

- Callister, William D. Jr. (2007) Materials Science and Engineering : Introduction 7<sup>th</sup> Edition, John Wiley & Sons, Inc, USA
- Chakrabarty, B.; Goshal, A.K.; Purkait, M.K. (2008) Effect of Molecular Weight of PEG on Membrane Morphology and Transport Properties, *Journal of Membrane Science*, Vol 309, Hal 209-221.
- Chien, C.W.; Chen, O.Y.; Liu, Y.; Li, K. (2008) Ceramic Asymmetric Hollow Fibre Membranes-One Step Fabrication Process, *Journal of Membrane Science*, Vol 320, Hal 191-197.
- Cousin, P and Ross, R.A. (1990) Preparation of Mixed Oxides; A Review, *Materials Science and Engineering*, Vol A130, Hal 119-125.
- Feng, C.; Shi, B.; Li, G.; Wu, Y. (2004) Preliminary research on microporous membrane from F2.4 for membrane distillation, *Sep. Pur. Tech.* Vol 39, Hal 221-228.
- Feng, L.M.; Jiang, L.Q.; Zhu, M.; Liu, H.B.; Zhou, X.; Li, C.H. (2008) Formability of ABO<sub>3</sub> Cubic Perovskite, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, Vol 69, Hal 967-974.
- Fontananova, E.; Jansen, J.C.; Cristiano, A.; Curcio, E.; Drioli, E. (2006) Effect of Additives in the Casting Solution on the formation of PVDF membranes, *Desalination*, Vol 192, Hal 190-197.
- Hawort, P; Smart, S.; Glasscock, J.; Diniz, J.C.C. (2011) Yttrium Doped BSCF Membranes for Oxygen Separation, *Sep. Purif. Technol.*, Vol 81, Hal 88-93.
- Hudabillah, S.K.; Harun, Z.; Othman, M.H.D.; Ismail, A.F.; Salleh, W.N.W.; Basri, H.; Yunus, M.Z.; Gani, P. (2016) Preparation and Characterization of Low Cost Porous Ceramic Membrane Support from Kaolin Using Phase Inversion/Sintering Technique for Gas Separation : Effect of

- Kaolin Content and Non-Solvent Coagulant Bath, *chemical Engineering Research and Design*, vol 112, Hal 24-35.
- Humphries, W.T.; Wildnauer, R.H. (1971) Thermomechanical Analysis of Stratum Corneum, *The Journal of Investigative Dermatology*, vol 57, Hal 32-37.
- Husnah, Khomsatu Dian (2014) Preparasi Membran Datar Asimetris Oksida Perovskit  $\text{CaTiO}_3$ , Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
- Jalowiecki-Duhamel, L.; Zarrou, H.; D'Huysser, A. (2008) Hydrogen Production at Low Temperature from Methane on Cerium and Nickel Based Mixed Oxides, *International of Hydrogen Energy*, vol 33, Hal 5527-5534.
- Jin, W.; Li, S.; Huang, P.; Xu, N.; Shi, J.; Lin, Y.S. (2000) Tubular Lanthanum Cobaltite Perovskite-Type Membrane Reactors for Partial Oxidation of Methane to Syngas, *Journal of Membrane Science*, Vol 166, Hal 13-22.
- Mizusaki, J.; Mima, Y.; Yamuchi, S.; Fueki, K.; Tagawa, H. (1989) *Journal Solid State Chemistry*, Vol 80, Hal 102-111.
- Kang, Uk-Joong (2005) Sintering : Densification, Grain Growth & Microstructure, Butterworth-Heinemann, Korea.
- Khayet, M.; Matsuura, T (2011) Formation of Flat Sheet Phase Inversion MD Membrane, *Membran Distillation*, Hal 41-58
- Kim, J.; Lee, K. (1998) Effect of PEG Additive on Membrane Formation by Phase Inversion, *Journal of Membrane Science*, Vol 138, Hal 153-163.
- Lalia, B.S.; Kochkodan, V.; Hashaiekh, R.; Hilal, N. (2013) A Review on Membrane Fabrication : Structure, Properties, and Performance Relationship, *Desalination*, Vol 326, Hal 77-95.

- Lane, J.A.; Benson, S.J.; Waller, D.; Kilner, J.A. (1999) Oxygen Transport in  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ , *Solid State Ionics*, Vol 121, Hal 201-208.
- Lankhorst, M.H.R. and Elshof, J.E. (1997) Thermodynamic Quantities and Defect Structure of  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  ( $y=0-0,6$ ) from High-Temperature Coulometric Titration Experiment, *Journal of Solid State Chemistry*, Vol 130, Hal 302-310
- LU Y.; Dixon, A.G.; Moser, W.R.; Ma, Y.H. (2000) Oxygen-permeable Dense Membrane Reactor for the Oxidative Coupling of Methane, *Journal of Membrane Science*, Vol 170, Hal 27-34
- Ma, Y.; Shi, F.; Ma, J.; Wu, M.; Zhang, J.; Gao, C. (2011) Effect of PEG additive on the Morphology and Performance of Polysulfone Ultrafiltration Membranes, *Desalination*, vol 272, Hal 51-58
- Machfudzoh, Maya (2014) Pengaruh Suhu Sintering terhadap Morfologi dan Sifat Mekanik Membran Rapat Asimetris  $\text{CaTiO}_3$ , Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
- Maulidah, Ninik (2011) Sintesis dan Karakterisasi Oksida Perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,0 \leq x, y \leq 0,5$ ) dengan Metode Solid State, Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
- Mulder, M. (1996) *Basic principles of Membrane Technology*, 2nd ed., Kluwer Academic Publisher, Dordrecht
- Muller, O. and Roy, R. (1974) *The Major Ternary Structural Families*, Springer-Verlag, Berlin.
- Nurherdiana, S.D.; Sholichah, N.; Iqbal, R.M.; Sahasrikirana, M.S.; Utomo, W.P.; Akhlus, S.; Nurlina; Fansuri, H. (2017) Preparation of  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7328) by Combination of Mechanochemical and Solid State Reaction,

- Symposium on Materials Science and Engineering*, hal 399-403.
- Othman, N.H.; Wu, Z.; Li, K. (2013)  $\text{Bi}_{1.5}\text{Y}_{0.3}\text{Sm}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ - based Ceramic Hollow Fibre Membranes for Oxygen Separation and Chemical Reactions, *Journal of Membrane Science*, vol 432, Hal 58-65.
- Pei, S.; Kleefisch, M.S.; Kobylinski, T.P.; Faber, J.; Udovich, C. A.; Zhang-mccoy, V.; Dabrowski, B.; Balachandra, U.; Mievile, R. L.; Poeppel, R. B. (1995) Failure Mechanisms of Ceramic Membrane Reactors in Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas, *Catalyst Letter*, Vol 30, Hal 201-212.
- Petric, A.; Huang, P.; Tietz, F. (2000) Evaluation of La-Sr-Co-Fe-O Perovskite for Solid Oxide Fuel Cells and Gas Separation Membranes, *Solid State Ionics*, vol 135, Hal 719-725.
- Prasetyoko, D.; Fansuri, H.; Ni'mah, Y.L.; Fadlan, A. (2016) *Karakterisasi Struktur Padatan*, Deepublish, Yogyakarta.
- Roseno, K.T.C.; Brackmann, R.; da Silva, M.A.; Schmal, M. (2016) Investigation of  $\text{LaCoO}_3$ ,  $\text{LaFeO}_3$  and  $\text{LaCo}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$  Perovskite as Catalyst Precursors for Syngas Production by Partial Oxidation of Methane, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol 41, Hal 18178-18192.
- Santos, L. C. L.; Moraes, C.; Hudhes, R. (2011) Characterization of Hollow Fibre Membranes for Oxygen Permeation and Partial Oxidation Reactions, *Brazilian Journal of Petroleum and Gas*, Vol 5, Hal 45-54
- Sari, A.; Bicer, A.; Alkan, C. (2017) Thermal Energy Storage Characteristics of Poly(Styrene-co-maleicanhydride)-grafit-PEG as Polymeric Solid-solid Phase Change Materials, *Solar Energy Materials & Solar Cells*, vol 161, Hal 219-225.
- Shao Z.P.; Xiong, G.X.; Cong, Y.; Yang, W.S. (2000) Synthesis and Oxygen Permeation Study of Novel Perovskite-type

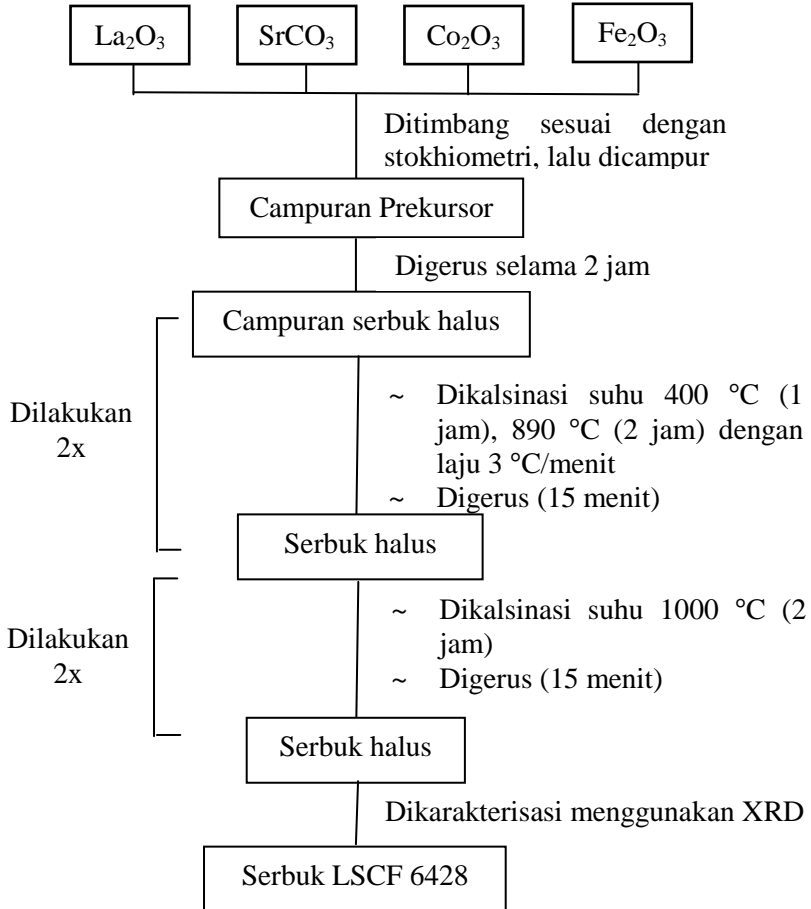
- BaBi<sub>x</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8-x</sub>O<sub>3-δ</sub> Ceramic Membranes, *Journal of Membrane Science*, vol 164, Hal167–176.
- Strathmann, Heinrich (2011) *Introduction to Membrane Science and Technology*, Wiley-VCH Verlag & Co, Weinheim.
- Strathmann, H.; Kock, K.; Amar, P. (1975) The Formation Mechanism of Asymmetric Membranes, *Desalination*, Vol 16, Hal 179-203.
- Sunarso, J; Baumann, S.; Serra, J.M.; Meulenberg, W.A.; Liu, S.; Lin, Y.S.; da Costa, J.C.D. (2008) Mixed Ionic-Electronic Conducting (MIEC) Ceramic-Based Membranes for Oxygen Separation, *Journal of Membrane Science*. Vol 320, Hal 13-41.
- Swierczek, Konrad (2008) Thermoanalysis, nonstoichiometry and thermal expansion of La<sub>0.4</sub>Sr<sub>0.6</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>, La<sub>0.2</sub>Sr<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>, La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Co<sub>1/3</sub>Fe<sub>1/3</sub>Ni<sub>1/3</sub>O<sub>3-δ</sub> and La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.6</sub>Ni<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> perovskites, *Solid State Ionic*, vol 179, Hal 126-130.
- Tan, X.; Wang, Z.; Li, K. (2010) Effects of Sintering on the Properties of La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> Perovskite Hollow Fiber Membranes, *Ind. Eng. Chem. Res*, Vol 49, Hal 2895-2901.
- Tan, X.; Liu, N.; Meng, B.; Liu, S. (2011) Morphology Control of the Perovskite Hollow Fiber Membranes for Oxygen Separation Using Different Bore Fluids, *Journal of Membrane Science*, Vol 378, Hal 308-318.
- Teraoka, Y.; Zhang, H.; Furukawa, S.; Yamazoe, N. (1985) Oxygen Permeation Through Perovskite-Type Oxides, *Chemistry Letters*, Vol 14, Hal 1743-1746
- Tomaszewska, M. (1996) Preparation and properties of flat-sheet membranes from polyvinylidene fluoride for membrane distillation, *Desalination*, Vol 104, Hal 1-11

- Ulbricht, Mathias (2014) Membrane Separation Using Molecularly Imprinted Polymers, *Journal of Chromatography B*. Vol 804, Hal 113-125.
- Utami, Zulita Dian (2014) Preparasi Membran Perovskit  $\text{CaTiO}_3$  dengan Aditif Polietilen Glikol, Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Wang, H.; Cong, Y.; Yang, W.(2002) Oxygen Permeation Study in a Tubular  $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  Oxygen Permeable Membrane, *Journal of Membrane Science*, Vol 210, Hal 259-271.
- West, Anthony R.(2014) Solid State Chemistry and Its Application Second Edition, John Wiley & Sons Ltd, UK.
- Yuan, R.; He, W.; Zhang, Y.; Gao, J.; Chen, C. (2016) Preparation and Characterization of Support Planar  $\text{Zr}_{0,84}\text{Y}_{0,16}\text{O}_{1,92}\text{-La}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{Cr}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_{3-\delta}$  Composite Membrane, *Journal of Membrane Science*, Vol 499, Hal 335-342.
- Yusran, Muhammad (2014) Pengaruh penambahan Aditif pada Membran Datar Asimetris Oksida Perovskit  $\text{LaCo}_{0,8}\text{Ni}_{0,2}\text{O}_3$  dan  $\text{LaCo}_{0,8}\text{Cu}_{0,2}\text{O}_3$ , Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.

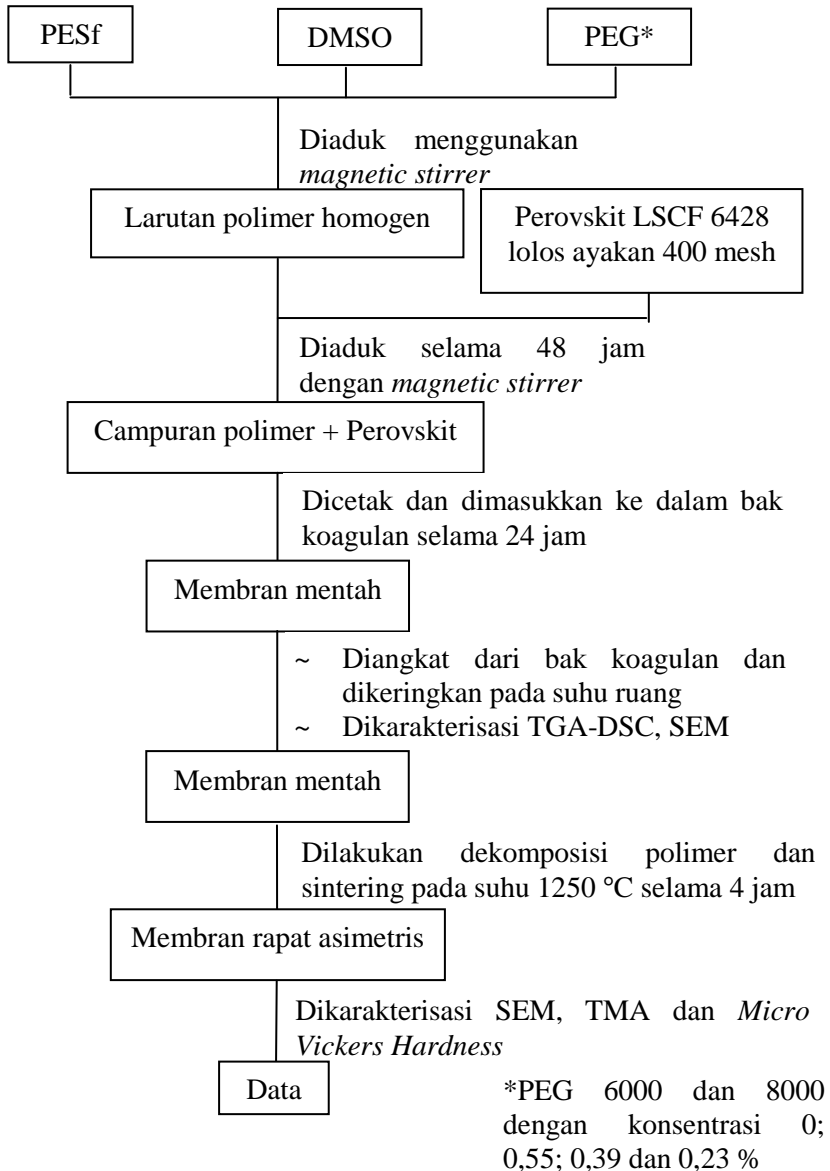


## LAMPIRAN A SKEMA KERJA

### A.1. Skema Kerja Sintesis $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$



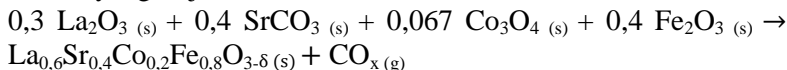
## A.2. Skema Kerja Preparasi Membran Asimetris Perovskit $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$



## LAMPIRAN B PERHITUNGAN

### B.1. Perhitungan Sintesis LSCF 6428

Reaksi yang terjadi :



Data berat molekul

$$\text{Mr La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta} = 222,8576 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr La}_2\text{O}_3 = 325,82 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,62 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Co}_3\text{O}_4 = 240,79 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Fe}_2\text{O}_3 = 159,674 \text{ g/mol}$$

Massa produk yang diinginkan adalah 75 gram.

Perhitungan mol LSCF 6428

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{\text{Mr}} \\ &= \frac{75 \text{ g}}{222,8576 \text{ g/mol}} \\ &= 0,336 \text{ mol} \end{aligned}$$

Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

$\text{La}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol La}_2\text{O}_3 &= 0,3 \times 0,336 \text{ mol} \\ &= 0,1008 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Massa La}_2\text{O}_3 &= \text{mol} \times \text{Mr La}_2\text{O}_3 \\ &= 0,1008 \text{ mol} \times 325,82 \text{ g/mol} \\ &= 32,8426 \text{ g} \end{aligned}$$

$\text{SrCO}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol SrCO}_3 &= 0,4 \times 0,336 \text{ mol} \\ &= 0,1344 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\text{Massa SrCO}_3 = \text{mol} \times \text{Mr SrCO}_3$$

$$= 0,1344 \text{ mol} \times 147,62 \text{ g/mol}$$

$$= 19,840 \text{ g}$$



$$\text{Mol Co}_3\text{O}_4 = 0,067 \times 0,336 \text{ mol}$$

$$= 0,0225 \text{ mol}$$

$$\text{Massa Co}_3\text{O}_4 = \text{mol} \times \text{Mr CoCO}_3$$

$$= 0,0225 \text{ mol} \times 240,79 \text{ g/mol}$$

$$= 5,418 \text{ g}$$



$$\text{Mol Fe}_2\text{O}_3 = 0,4 \times 0,336 \text{ mol}$$

$$= 0,1334 \text{ mol}$$

$$\text{Massa Fe}_2\text{O}_3 = \text{mol} \times \text{Mr Fe}_2\text{O}_3$$

$$= 0,1334 \text{ mol} \times 159,674 \text{ g/mol}$$

$$= 21,3005 \text{ g}$$

## **B.2. Perhitungan Komposisi Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428**

$$\text{PESf} : \text{DMSO} : \text{LSCF 6428} = 5,23\% : 42,66\% : 52,11\% \text{ (b/b)}$$

$$\text{Jumlah larutan suspensi polimer} = 12,80 \text{ gram}$$

$$\rho \text{ Dimethyl Sulfoxide} = 1,092 \text{ g/mL}$$

$$\text{Massa Polietersulfon} = 5,23\% \times 12,80 \text{ gram}$$

$$= 0,67 \text{ gram}$$

$$\text{Volume DMSO} = (m / \rho)$$

$$= \frac{(42,66\% \times 12,80 \text{ gram})}{1,092 \text{ g/mL}}$$

$$= 5,00 \text{ mL}$$

$$\text{Massa Perovskit LSCF 6428} = 52,11\% \times 12,80 \text{ gram}$$

$$= 6,67 \text{ gram}$$

$$\text{Massa 0,23 \% PEG} = 0,23\% \times 12,80 \text{ gram}$$

$$= 0,03 \text{ gram}$$

$$\begin{aligned}
 \text{Massa 0,39 \% PEG} &= 0,39\% \times 12,80 \text{ gram} \\
 &= 0,05 \text{ gram} \\
 \text{Massa 0,55 \% PEG} &= 0,55 \% \times 12,80 \text{ gram} \\
 &= 0,07 \text{ gram}
 \end{aligned}$$

### B.3. Perhitungan % Penyusutan Membran

$$\begin{aligned}
 \% \text{ Penyusutan} &= \frac{\text{ketebalan awal} - \text{ketebalan akhir}}{\text{ketebalan awal}} \times 100 \% \\
 &= \frac{0,17 - 0,075}{0,17} \times 100 \% \\
 &= 55,88 \%
 \end{aligned}$$

Tabel 1 Hasil % Penyusutan Membran

Variasi Membran	ketebalan sebelum sintering (cm)	ketebalan setelah sintering (cm)	% penyusutan
Tanpa aditif	0,17	0,075	55,88
PEG 6000 0,23%	0,16	0,1	37,50
PEG 6000 0,39%	0,14	0,08	42,86
PEG 6000 0,55%	0,17	0,09	47,06
PEG 8000 0,23%	0,13	0,08	38,46
PEG 8000 0,39%	0,16	0,11	31,25
PEG 8000 0,55%	0,14	0,1	28,57

### B.4. Perhitungan Volume pori

$$\begin{aligned}
 \text{Volume pori} &= \frac{(\text{massa setelah} - \text{massa sebelum}) \div \text{pair}}{\text{Massa sebelum}} \\
 &= \frac{(0,1345 - 0,1256) \text{ g} \div 1 \text{ g/mL}}{0,1256} \\
 &= 0,0709 \text{ mL/g}
 \end{aligned}$$

Tabel 2 Pengukuran volume pori membran

Variasi	Massa awal (g)	Massa akhir (g)	Volume pori (mL/g)
Tanpa Aditif	0,1256	0,1345	0,0709
PEG 6000 0,23%	0,1530	0,1680	0,0980
PEG 6000 0,39%	0,0569	0,0635	0,1160
PEG 6000 0,55%	0,0997	0,1091	0,0943
PEG 8000 0,23%	0,1272	0,1363	0,0715
PEG 8000 0,39%	0,1143	0,1218	0,0656
PEG 8000 0,55%	0,1153	0,1236	0,0720

### B.5. Perhitungan nilai kekerasan Membran.

$$\begin{aligned}
 L &= \frac{1}{2} \times (D1 + D2) \\
 &= \frac{1}{2} \times (49,13 + 44,79) \mu\text{m} \\
 &= 46,96 \mu\text{m}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 Hv &= 1,854 \times \frac{P}{L^2} \\
 &= 1,854 \times \frac{0,5 \text{ Kgf}}{(0,04696 \text{ mm})^2} \\
 &= 420,5 \text{ Kgf/mm}^2
 \end{aligned}$$

Tabel 3 Hasil Uji Kekerasan Membran

Variasi	Beban (Kgf)	D1 (μm)	D2 (μm)	Hv tiap titik (Kgf/mm <sup>2</sup> )	Hv rata-rata (Kgf/mm <sup>2</sup> )
Tanpa Aditif	0,2	32,24	29,74	386,2	412,36
		20,88	34,2	488,9	
		27,88	29,13	456,4	
		26,14	31,19	451,4	
		37,84	35,09	278,9	

PEG 6000 0,23%	0,5	49,13	44,79	420,5	506,6
		36,45	37,77	673,3	
		41,09	43,58	517,3	
		51,96	33,34	509,8	
		49,98	44,9	412,1	
PEG 6000 0,39%	0,2	41,6	27,57	310	200,08
		39,77	53,77	169,6	
		46,97	47,49	166,2	
		51,61	58,97	121,3	
		38,26	41,48	233,3	
PEG 6000 0,55%	0,5	49,55	50,11	373,4	409,9
		48,9	50,27	377,1	
		54,22	48,88	348,9	
		44,3	53,52	387,5	
		35,71	45,48	562,6	
PEG 8000 0,23%	0,5	41,14	54,41	406,3	460,52
		37,38	52,04	463,8	
		51,23	61,33	292,7	
		39,57	37,63	622,2	
		46,12	38,52	517,6	
PEG 8000 0,39%	0,5	43,61	41,38	513,4	507,62
		39,74	55,07	412,5	
		33,58	45,59	591,9	
		44,42	42,66	489,1	
		38,75	44,8	531,2	
PEG 8000 0,55%	0,5	58,25	53,39	297,6	494,66
		40,83	47,23	478,2	
		40,88	44,64	507	
		34,83	43,93	598	

		37,17	41,95	592,5	
--	--	-------	-------	-------	--

## B.6. Uji ANOVA Nilai Kekerasan Membran Asimetris Perovskit LSCF 6428

### SUMMARY

<i>Groups</i>	<i>Count</i>	<i>Sum</i>	<i>Average</i>	<i>Variance</i>
Tanpa Aditif	5	2061,8	412,36	6954,483
PEG 6000 0,23%	5	2533	506,6	11064,27
PEG 6000 0,39%	5	1000,4	200,08	5367,287
PEG 6000 0,55%	5	2049,5	409,9	7487,035
PEG 8000 0,23%	5	2302,6	460,52	15128,17
PEG 8000 0,39%	5	2538,1	507,62	4270,837
PEG 8000 0,55%	5	2473,3	494,66	14876,92

### ANOVA

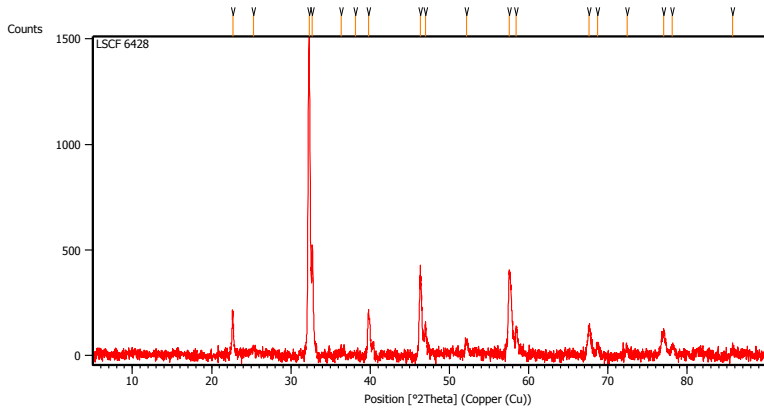
<i>Source of Variation</i>	<i>SS</i>	<i>df</i>	<i>MS</i>	<i>F</i>	<i>P-value</i>	<i>F crit</i>
Between Groups	352677,8	6	58779,64	6,31563	0,00027	2,44526
Within Groups	260596	28	9307			
Total	613273,8	34				

Pada tabel hasil uji ANOVA menunjukkan F hitung (6,31563) > F kritis (2.44526) sehingga  $H_0$  ditolak, artinya penambahan aditif PEG pada membran asimetris perovskit LSCF 6428 menghasilkan nilai kekerasan membran yang berbeda signifikan.



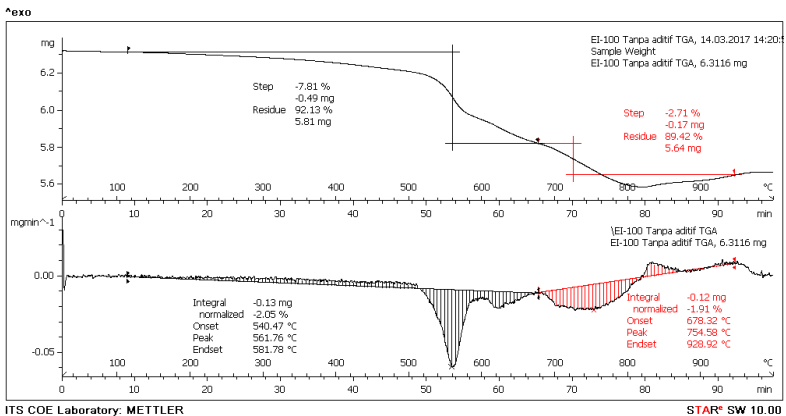
## LAMPIRAN C HASIL KARAKTERISASI

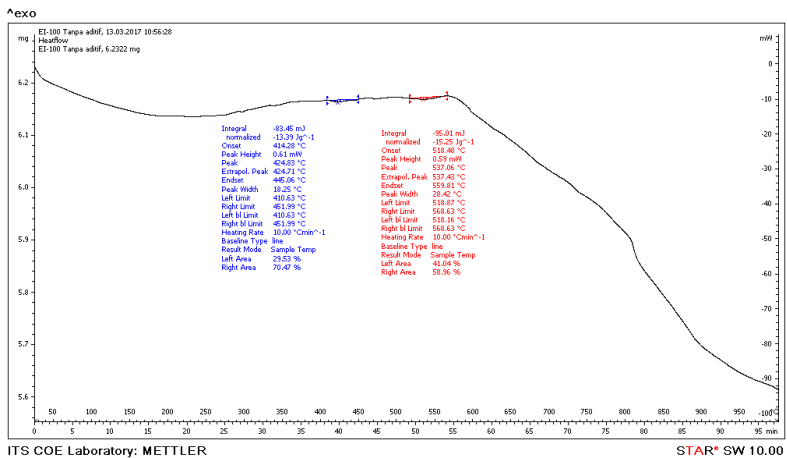
### C.1. Hasil Analisa Difraksi Sinar X



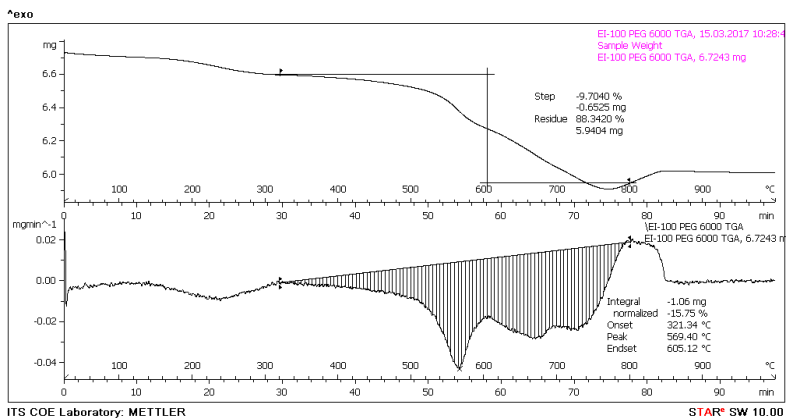
Gambar 1 Difraktogram LSCF 6428

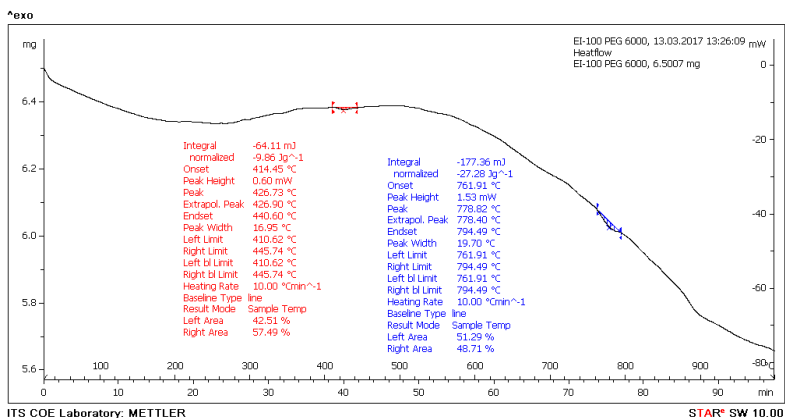
### C.2. Hasil TGA-DSC Membran Mentah LSCF 6428



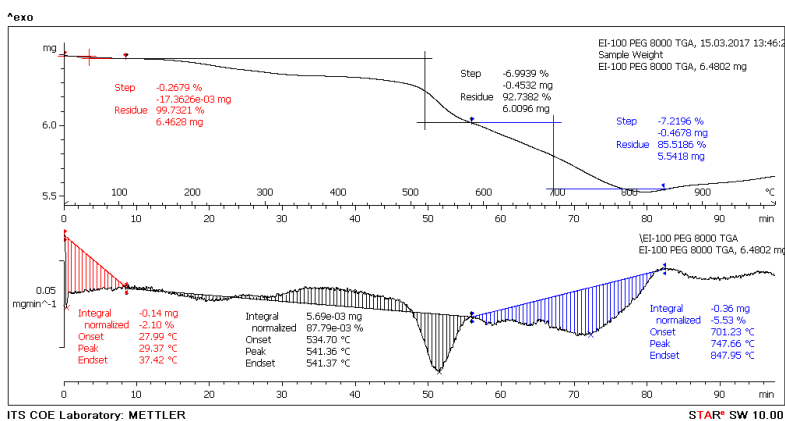


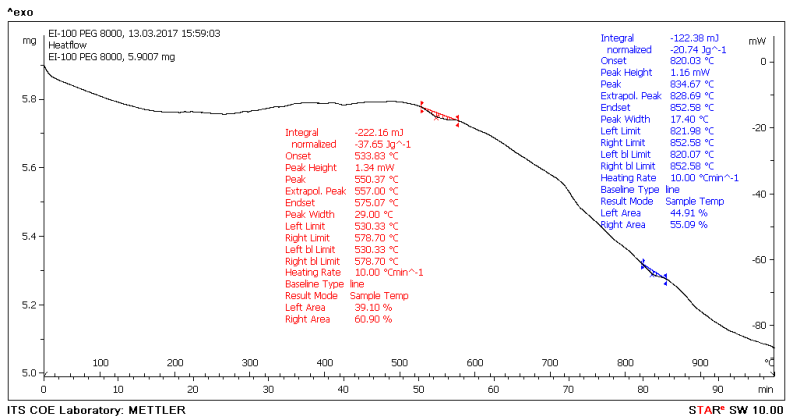
Gambar 2 Termogram TGA-DSC membran tanpa aditif





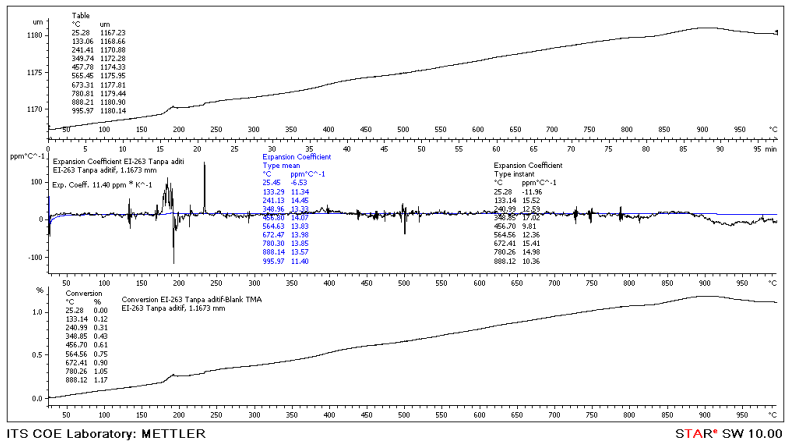
Gambar 3 Termogram TGA-DSC membran dengan PEG 6000



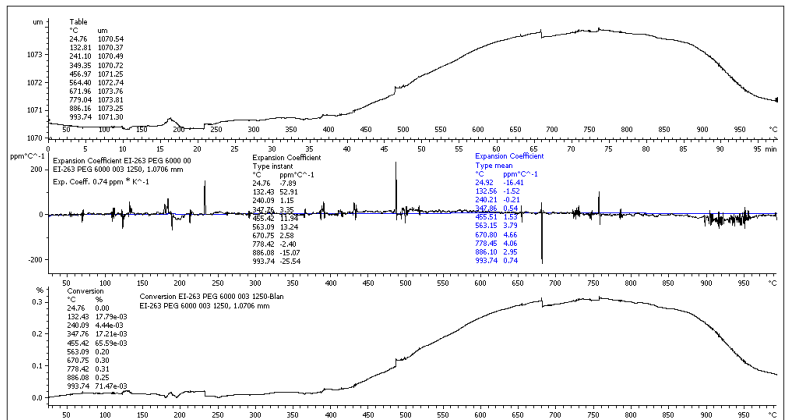


Gambar 4 Termogram TGA-DSC Membran dengan PEG 8000

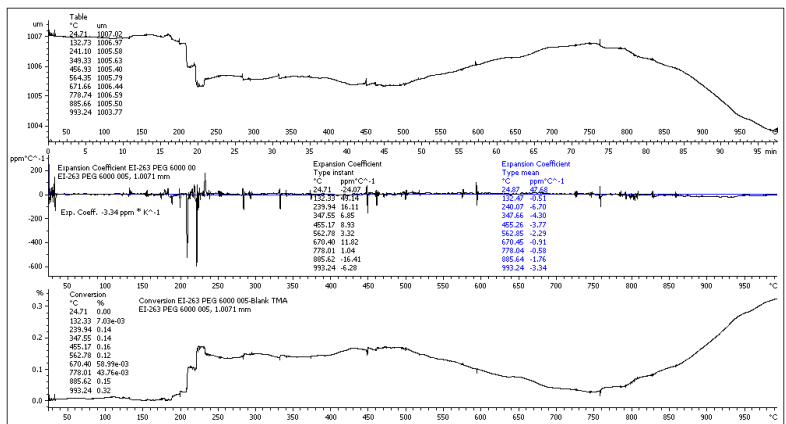
### C.3. Hasil TMA Membran Asimetris LSCF 6428



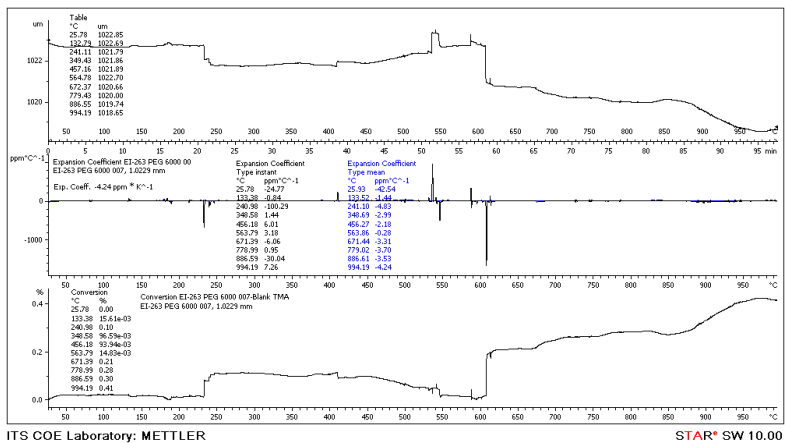
Gambar 5 Hasil TMA Membran Tanpa Aditif



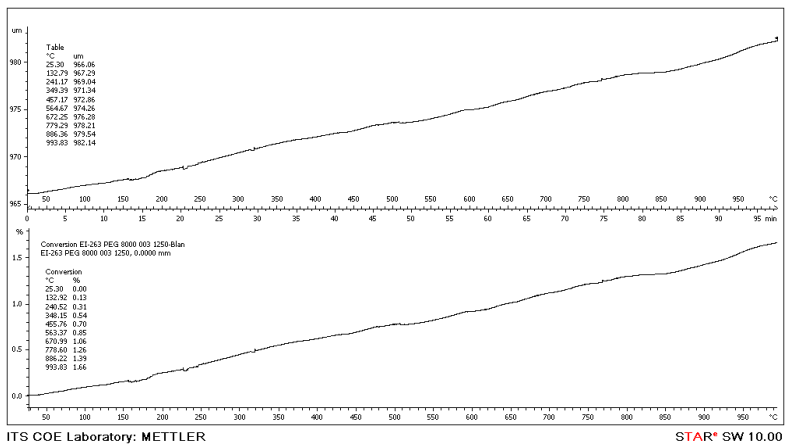
ITS COE Laboratory: METTLER STAR<sup>®</sup> SW 10.00  
Gambar 6 Hasil TMA Membran dengan Penambahan PEG 0,23%



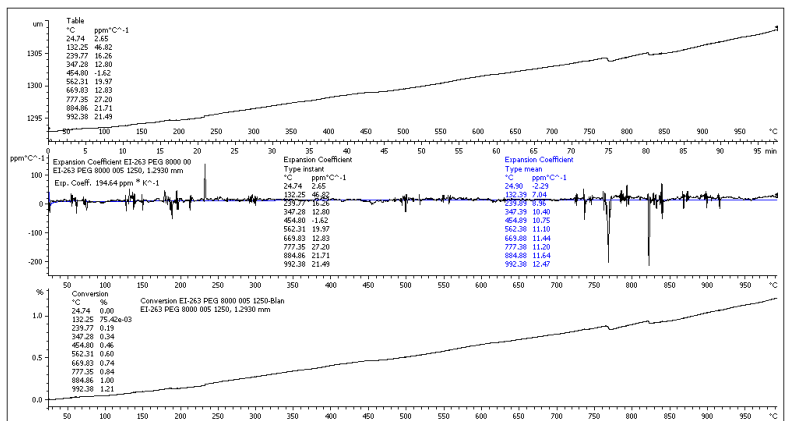
ITS COE Laboratory: METTLER STAR<sup>®</sup> SW 10.00  
Gambar 7 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 6000 0,39%



Gambar 8 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 6000 0,55%



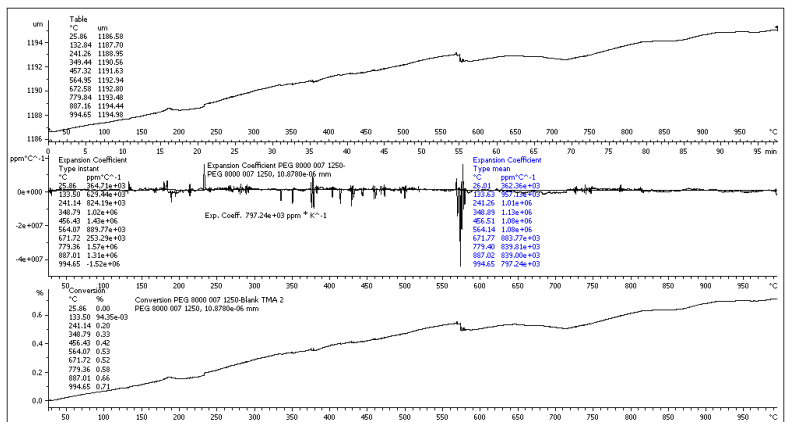
Gambar 9 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 8000 0,23%



ITS COE Laboratory: METTLER

STAR® SW 10.00

Gambar 10 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 8000 0,39%



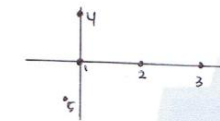
ITS COE Laboratory: METTLER

STAR® SW 10.00

Gambar 11 Hasil TMA membran dengan penambahan PEG 8000 0,55%

#### C.4. Hasil Karakterisasi Micro Vickers Hardness

1. PEG 8000 0,03

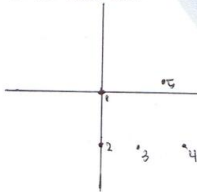


Force = 0,5 kgf  
Holding = 10 detik.

N=169 X= 0.000 Y= 0.000 HARDNESS=406.3  
D1= 41.14 D2= 54.41 HRC= 41.4  
N=171 X= 0.976 Y= -0.049 HARDNESS=463.8  
D1= 37.38 D2= 52.04 HRC= 46.4  
N=173 X= 1.398 Y= -0.049 HARDNESS=292.7  
D1= 51.23 D2= 61.33 HRC= 28.8  
N=175 X= 0.060 Y= 0.606 HARDNESS=622.2  
D1= 39.57 D2= 37.63 HRC= 56.5  
N=176 X= -0.021 Y= -0.494 HARDNESS=517.6  
D1= 46.12 D2= 38.52 HRC= 50.3

Gambar 12 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 8000 0,23 %

2. PEG 8000 0,07



Force = 0,5 kgf  
Holding = 10 detik.

N=177 X= 0.000 Y= 0.000 HARDNESS=373.4  
D1= 49.55 D2= 50.11 HRC= 38.1  
N=178 X= 0.000 Y= -0.364 HARDNESS=377.1  
D1= 48.90 D2= 50.27 HRC= 38.5  
N=179 X= 0.513 Y= -0.364 HARDNESS=348.9  
D1= 54.22 D2= 48.88 HRC= 35.4  
N=180 X= 1.145 Y= -0.364 HARDNESS=337.5  
D1= 44.30 D2= 53.52 HRC= 39.5  
N=181 X= 0.901 Y= 0.029 HARDNESS=562.6  
D1= 35.71 D2= 45.48 HRC= 53.2

Gambar 13 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 6000 0,55 %

3. PEG 8000 0,09



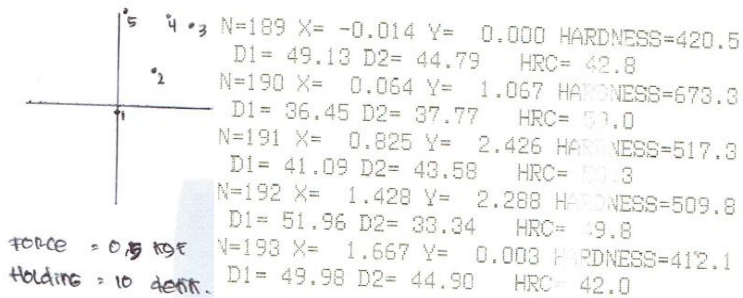
Force = 0,5 kgf  
Holding = 10 detik.

N=183 X= 0.000 Y= 0.000 HARDNESS=297.6  
D1= 58.25 D2= 53.39 HRC= 29.4  
N=184 X= 0.139 Y= 0.680 HARDNESS=478.2  
D1= 40.83 D2= 47.23 HRC= 47.6  
N=185 X= 0.497 Y= 1.459 HARDNESS=507.0  
D1= 40.88 D2= 44.64 HRC= 49.6  
N=186 X= 1.196 Y= 1.569 HARDNESS=598.0  
D1= 34.83 D2= 43.93 HRC= 55.2  
N=187 X= 1.640 Y= 0.537 HARDNESS=592.5  
D1= 37.17 D2= 41.95 HRC= 54.9

Gambar 14 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 8000 0,55 %

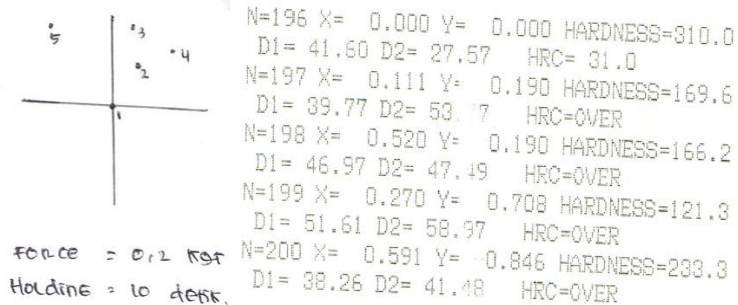


4. PEG 6000 0,03



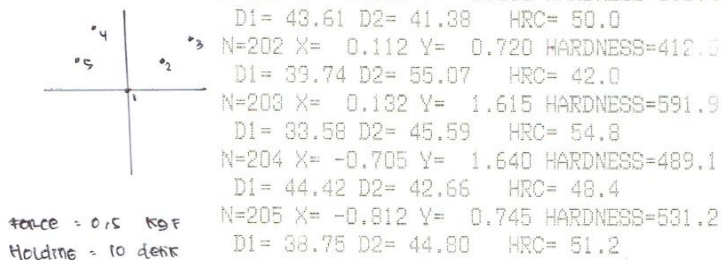
Gambar 15 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 6000 0,23 %

5. PEG 6000 0,25



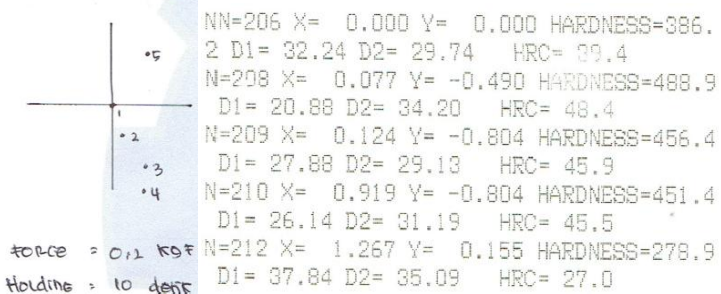
Gambar 16 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 6000 0,39 %

6. PEG 8000 0,5



Gambar 17 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran dengan penambahan PEG 8000 0,39 %

7. Rimpo Adhif 1250



Gambar 18 Hasil Uji Micro Vickers Hardness membran tanpa penambahan PEG

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## BIODATA PENULIS



Penulis dilahirkan di Tulungagung pada tanggal 07 April 1995 dan merupakan anak kedua dari pasangan Ghufroon dan Miftkhunimah. Penulis memiliki nama lengkap Mohammad Hasnan Habib dan biasa dipanggil Hasnan atau Habib oleh teman-temannya. Penulis pernah menempuh pendidikan formal di MI Islamiyah Kalidawir, MTsN Tunggangri dan MAN 2 Tulungagung. Penulis

dinyatakan diterima sebagai mahasiswa di departemen Kimia ITS lewat jalur SBMPTN pada tahun 2013 dengan NRP 1413100081. Selama kuliah penulis tidak hanya sibuk dengan hal-hal akademik saja, tapi juga aktif sebagai fungsionaris dan kepanitian ormawa di ITS. Tercatat penulis pernah aktif menjadi staf departemen Syiar di *Chemistry Islamic Studies* (CIS) ITS 2014-2015, staf kemeterian Pengembangan Sumber Daya Mahasiswa (PSDM) BEM ITS 2014-2015 dan ketua Himpunan Mahasiswa Kimia (HIMKA) ITS 2015-2016. Penulis juga pernah menjadi peserta aktif LKMM dari jenjang Pra TD sampai TL dan juga terdaftar aktif sebagai pemandu LKMM ITS. Penulis merupakan salah satu anggota kelompok penelitian *Material for Energy and Environment* di bawah bimbingan Hamzah Fansuri, Ph.D dan Ir.Endang Purwanti S., M.T. Penulis dapat dihubungi melalui email [mohabib081@gmail.com](mailto:mohabib081@gmail.com)